LE JOURNAL DE PHYSIQUE

ET

LE RADIUM

TRANSITIONS GAMMA DE BASSE ÉNERGIE ET ÉLECTRONS AUGER DE LA DÉSINTÉGRATION ^{99}Mo → ^{99}Tc

Par J. RAVIER, Mme P. MARGUIN et A. MOUSSA (*),
Institut de Physique Nucléaire, Lyon.

Résumé. — Les transitions gamma à basse énergie de la désintégration $^{99}_{42}$Mo → $^{99}_{43}$Tc ont été étudiées par l'intermédiaire des conversions interne et externe, en vue de préciser le schéma de désintégration. Accessoirement, le spectre d'électrons Auger *K* du $^{99}_{43}$Tc a permis d'obtenir le rendement de fluorescence et les rapports d'intensité des différents groupes : *KLL*, *KLX*, *KXY*.

Abstract. — Low energy gamma-transitions from the decay $^{99}_{42}$Mo → $^{99}_{43}$Tc have been studied by internal and external conversion, in order to verify some features of the disintegration scheme. The *K* fluorescence yield and the relative intensities of *K* Auger subgroups have been determined.

I. **Position du problème.** — Le molybdène 99 se désintègre avec une période de 67 heures par émission complexe β, pour atteindre les niveaux excités du technetium 99 dont l'un, d'énergie 142 keV est un état isomérique de période 6,04 heures. La figure 1 reproduit le schéma de désintégration

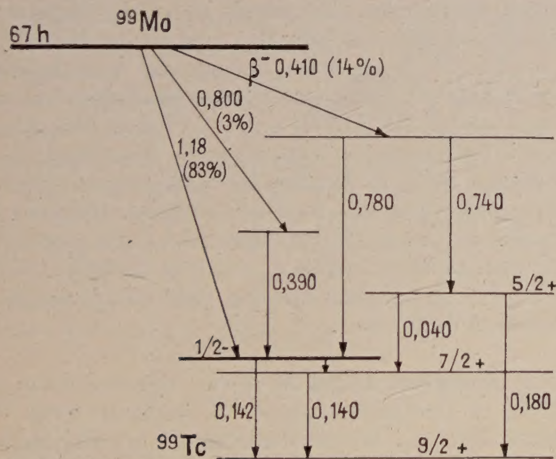


Fig. 1. — Schéma de désintégration ^{99}Mo → ^{99}Tc.

donné par C. Levi et L. Papineau [1] après différents auteurs [2], [3], [4]. Les travaux effectués jusqu'ici n'ont pas permis d'attribuer aux transitions 40 et 180 keV un caractère électromagnétique certain. Nous avons repris, par des méthodes de conversion interne et externe l'étude des transitions d'énergie 40, 140, 142 et 180 keV. De plus, le spectre des électrons Auger *K*, déjà étudié par Laberrigue-Frolow et Radvanyi [5], a été à nouveau mesuré en vue d'en déterminer la structure fine ainsi que le rendement de fluorescence.

II. **Préparation des sources et réglages du spectromètre.** — La conversion interne des transitions 40 et 180 keV a été étudiée au moyen de sources de ^{99}Mo. Des essais d'enrichissement isotopique basés sur l'effet Szilard-Chalmers ont été entrepris sur les molybdates d'ammonium et de potassium irradiés par un flux de neutrons. Par analogie avec certains travaux effectués sur les chromates [6] nous avons essayé de précipiter l'activité due à ^{99}Mo sous forme d'hydroxyde en utilisant comme porteur soit Cr^{3+} soit Al^{3+} introduit dans la solution sous forme d'alun. L'influence du p_H de la solution dans laquelle on dissout le molybdate irradié, qui est primordiale sur la rétention dans le cas du chrome, a été étudiée ici. Cependant aucune séparation d'activité n'a pu être décelée quel que soit le p_H. En définitive nous avons évaporé sous vide de l'oxyde de molybdène MoO_3 irradié une semaine à un flux de $1,8.10^{13}$ n/s/cm². Nous disposions ainsi d'un produit d'activité spécifique 60 mc/g. La vaporisation se faisait vers 600 °C sur un support mince de formwar aluminé de 40 μg/cm². La source

(*) Adresse actuelle : Faculté des Sciences, Grenoble.

retenue, I_1, avait une activité totale d'environ 7,5 μc en début de comptage, une épaisseur de 150 μg/cm², une largeur de 4 mm et une hauteur de 2 cm. Lors de l'évaporation, l'oxyde de molybdène se sublime plus facilement que le composé de technetium. Vers 600 °C on peut sublimer presque complètement le premier sans entraîner plus de 10 % de la quantité présente du second, bien que celui-ci n'existe qu'à l'état de traces.

La conversion interne des transitions liées à l'état isomérique et les électrons Auger du ^{99}Tc ont été étudiés sur des sources de $^{99}Tc^m$ préparées de la manière suivante : Le technetium est séparé du molybdène suivant le mode opératoire mis au point par Tribalat et Beydon [7].

La technique utilise l'extraction du pertechnétate de tétraphénylarsonium par le chloroforme en milieu alcalin. La solution chloroformique séparée et lavée est amenée à un petit volume par évaporation rapide en maintenant la température aux environs de 20 °C et en faisant au-dessus d'elle un vide relatif. Elle est alors déposée dans la gouttière de platine servant d'évaporateur et séchée à l'air. Les gouttières de tantale primitivement employées étaient attaquées en raison vraisemblablement du milieu fortement basique. Lors de nos premiers essais, la gouttière de platine était chauffée directement dans le vide. Les sources obtenues étaient épaisses par suite de la persistance d'une certaine quantité de réactif (chlorure de tétraphénylarsonium). Pour éliminer cet excès de réactif, nous avons chauffé légèrement dans l'air la gouttière de platine ce qui a pour effet de calciner les dernières traces de réactif. Un compteur permet de contrôler que l'oxyde de technétium Tc_2O_7 n'est pas entraîné. L'évaporation dans le vide se fait ensuite aux environs de 1 000 °C. Les supports de source étaient constitués suivant les cas par du mylar ou du mica, recouverts d'une mince couche d'aluminium destinée à les rendre conducteurs. Les sources préparées avaient une longueur de 20 mm, une largeur de 2 ou 4 mm. Les sources retenues pour les résultats sont :

sources I_2 et I_3 de largeur 2 mm sur mica (0,8 mg/cm²)
source I_4 de largeur 4 mm sur mylar (0,8 mg/cm²)
source I_4 de largeur 4 mm sur mica mince (0,4 mg/cm²).

Le rayonnement gamma a été étudié par la méthode photoélectrique en utilisant un convertisseur mince de plomb disposé devant un container en laiton de 0,5 mm d'épaisseur contenant MoO_3 irradié. L'activité spécifique de cet oxyde après irradiation à un flux de neutrons de 2.10^{12}/n/s/cm² est de 6 mc/g. Le plomb était déposé par évaporation sous vide sur une feuille de matière plastique (mylar de 0,2 mm d'épaisseur). Plusieurs modèles de container ont été utilisés en vue de diminuer le fond continu dû principalement aux électrons Compton. La figure 2 donne la coupe de deux modèles employés. Parmi les sources de photoélectrons faites, nous avons retenu :

la source E_1 (*fig. 2a*) avec un radiateur de Pb de largeur $l = 4$ mm, d'épaisseur $d = 260$ μg/cm², et un container utilisant $p = 3$ g de MoO_3 ;

la source E_2 avec $l = 4$ mm, $d = 260$ μg/cm², $p = 4$ g ;

la source E_3 (*fig. 2b*) avec $l = 4$ mm, $d = 230$ μg/cm², $p = 1{,}5$ g.

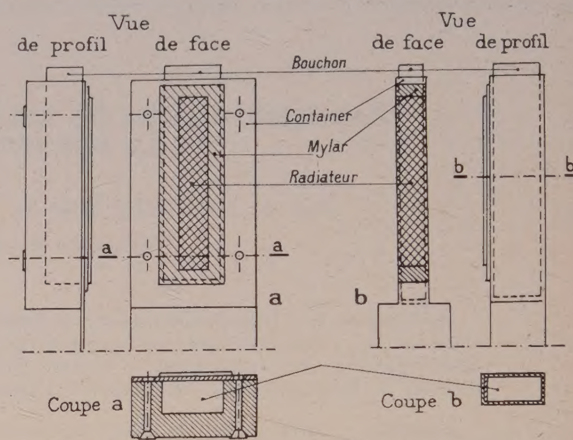


Fig. 2. — Système container-radiateur.

Toutes les mesures ont été effectuées avec le spectromètre magnétique sans fer et à double focalisation de l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon [8]. Le pouvoir séparateur dépendant à la fois de l'ouverture des diaphragmes et de la largeur de source, on règle l'ouverture des diaphragmes de façon que la largeur de source soit égale à celle de la tache d'aberration. Ceci donne pour une largeur de source de 2 mm un pouvoir séparateur théorique $R = 3{,}1.10^{-3}$ avec un facteur de transmission $T = 6{,}2.10^{-3}$. Pour une source de largeur 4 mm on a $R = 6{,}2.10^{-3}$ et $T = 9.10^{-3}$. Les comptages ont été faits avec un compteur G. M. rempli d'un mélange à 50 % d'argon et 50 % de vapeur d'éthanol et fermé par une fenêtre mince en formvar de cut-off 3 keV. La déformation introduite par celle-ci ne commençant qu'en dessous de 12 keV, toutes les études envisagées ont pu être effectuées sans correction de fenêtre.

III. **Électrons Auger *K*.** — La figure 3 donne le spectre d'électrons Auger *K* obtenu avec les sources I_4 et I_5, les résultats étant normalisés sur la source I_4. Le groupe Auger *KLL* présente une queue importante du côté des basses énergies due à l'absorption dans la source et la diffusion dans le support.

La figure ne représente pas toute l'extrémité de la queue du spectre. Celle-ci s'étendait presque vers 10 keV alors que l'absorption de la fenêtre était encore à peine sensible. Nous avons essayé d'étudier

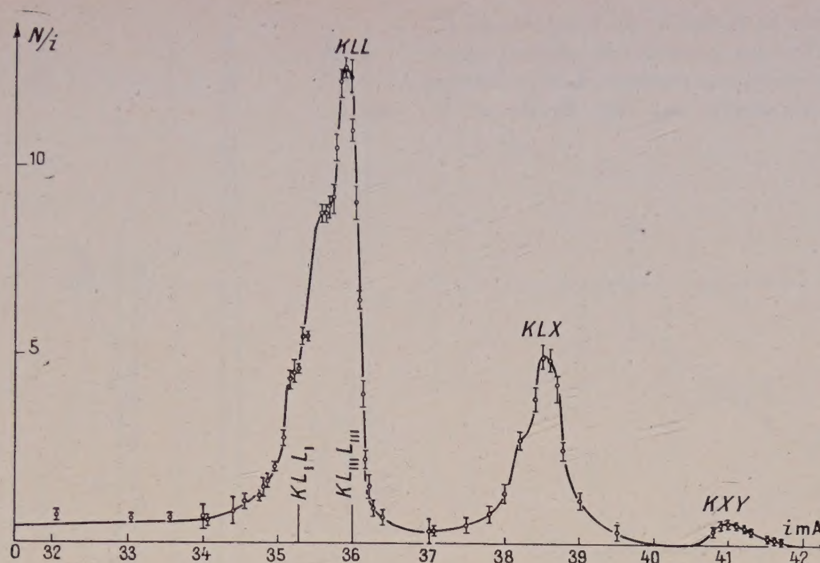


FIG. 3. — Spectre d'électrons Auger K du $^{99}Tc^m$.

des sources plus minces mais elles deviennent difficilement comptables en raison de la faible période de $^{99}Tc^m$. Les groupes Auger KLX et KXY sont parfaitement séparés et les groupes KLL et KLX facilement séparables. Le groupe Auger KLL présente à peine une amorce de structure qui ne nous permet pas une décomposition en raies. Ce fait était prévisible puisque le pouvoir séparateur théorique correspondant à des sources de 4 mm, $\Delta(B\rho)/B\rho = 6.10^{-3}$, est insuffisant pour distinguer deux raies voisines dont l'intervalle correspond à $\Delta(B\rho)/B\rho$ de l'ordre de 10^{-2}. Nous avons essayé d'augmenter le pouvoir séparateur en employant des sources de 2 mm de largeur et d'épaisseur comparable aux précédentes. Mais nous n'avons pas obtenu une meilleure séparation des raies. Nous sommes limités, non par le pouvoir séparateur de l'appareil, mais par l'activité spécifique du produit. L'étude précise des énergies des raies Auger K s'est donc révélée impossible. La structure obtenue pour le groupe est assez semblable à celles obtenues pour le cuivre ($Z = 29$) et le fer ($Z = 26$) par Bellicard et Moussa [9], [10], avec prépondérance des transitions $KL_{II}\,L_{III}$ et $KL_{III}\,L_{III}$.

Les intensités relatives des groupes d'électrons Auger K sont déterminées par le rapport des aires situées au-dessous des courbes donnant N/i en fonction de i.

Nous avons obtenu :

$$KLL/KLX/KXY = 1/0{,}35 \begin{matrix} +\,0{,}11 \\ -\,0{,}04 \end{matrix} /0{,}03 \pm 0{,}01.$$

Le tableau I résume les intensités relatives obtenues par d'autres auteurs pour le ^{99}Tc ainsi que des valeurs expérimentales et théoriques pour l'argent $Z = 47$.

Les valeurs que nous avons trouvées diffèrent assez sensiblement des résultats expérimentaux de Laberrigue et Radvanyi [5]. Les erreurs indiquées dans [5] nous paraissent assez optimistes et il semble bien que la queue du côté des basses énergies ait été rendue plus faible par l'absorption de la fenêtre. Nos résultats diffèrent également du résultat théorique de Pincherle [11], obtenu à partir de fonctions d'ondes hydrogénoïdes sans effet d'écran, mais seraient en assez bon accord avec celui de Rubinstein et Snyder [12], obtenu à partir des fonctions d'onde d'un champ « self consistent ».

TABLEAU I

INTENSITÉS RELATIVES DES GROUPES AUGER K	LABERRIGUE [5] $^{99}Tc^m$	JOHNSON ET FOSTER [14] Ag	PINCHERLE [11]	RUBINSTEIN ET SNYDER [12] Ag	PRÉSENT TRAVAIL
—	—	—	—	—	—
	Résultats expérimentaux		Résultats théoriques		
KLL	1	1	1	1	1
KLX	0,48 ± 0,06	0,73	0,715	0,312	$0{,}35 \pm \begin{matrix} 0{,}11 \\ 0{,}04 \end{matrix}$
KXY	0,05 ± 0,01	0,07	0,102	0,022	0,03 ± 0,01

Nous avons porté sur la figure 4, en fonction de Z, le rapport KLX/KLL que nous avons obtenu ainsi que ceux donnés par d'autres auteurs. Les points se placent approximativement sur une droite et le

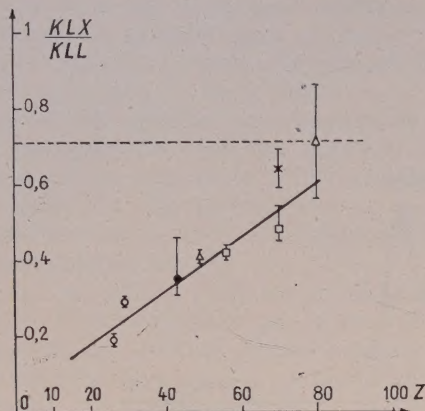


Fig. 4. — Rapport KLX/KLL en fonction de Z.
$Z = 26$ et $Z = 29$ [9] et [10].
$Z = 43$ Présent travail.
$Z = 49$ et $Z = 80$ [13].
$Z = 56$ et $Z = 70$ [21] et [22].
$Z = 70$ [23].

rapport KLX/KLL augmente avec Z, contrairement au résultat théorique de Pincherle qui prévoit un rapport indépendant de Z et égal à 0,710.

Nous avons mesuré le rendement Auger K par le rapport des intensités des groupes d'électrons Auger K et du pic K de conversion. Nous avons trouvé $a_K = 0{,}303 \begin{smallmatrix} + 0{,}046 \\ - 0{,}060 \end{smallmatrix}$. Les erreurs indiquées englobent l'erreur statistique sur chaque point et tiennent compte de la queue aux basses énergies. Il en résulte pour le rendement de fluorescence la valeur $\varpi_K = 0{,}697 \begin{smallmatrix} + 0{,}060 \\ - 0{,}046 \end{smallmatrix}$. Cette valeur est en bon accord avec celle trouvée par Laberrigue et Radvanyi [5] soit $0{,}70 \pm 0{,}03$ dont l'erreur, comme nous l'avons déjà dit, nous paraît minorée. Grâce à l'estimation de l'erreur, notre résultat donne un point qui se place bien sur la courbe de ϖ_K en fonction de Z donnée par ces auteurs.

IV. **Électrons de conversion.** — Le spectre de conversion interne obtenu avec les sources I_2 et I_3 ($^{99}Tc^m$) est donné par la figure 5 (les résultats ont été normalisés sur la source I_2). On en déduit les rapports suivants des intensités des raies de conversion :

$K\,140/K\,142 = 16{,}0 \pm 0{,}5$; $K\,140/L\,140 = 8{,}3 \pm 0{,}3$.

La source I_1 (^{99}Mo) donne l'ensemble du spectre de conversion interne à l'équilibre de régime $^{99}Mo \rightarrow {}^{99}Tc^m$ pour les transitions 40-140-142-180 keV (*fig.* 6). Les énergies exactes de ces transitions sont trouvées égales a :

$40{,}6 \pm 0{,}1$ (source I_1) ; $140{,}5 \pm 0{,}3$ (source I_2)

$142{,}6 \pm 0{,}3$ (source I_2) ; $181{,}3 \pm 0{,}7$ (source I_1).

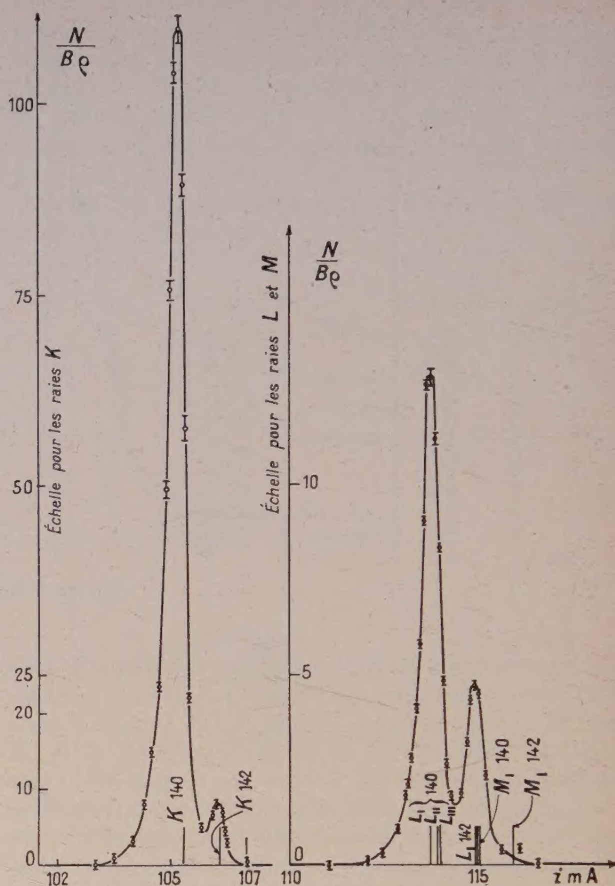


Fig. 5. — Spectre de conversion interne des γ de 140 et 142 keV.

Au pied de la raie K 40 se superpose le spectre Auger K. La surface de la raie K 40 a été déterminée en tenant compte du rapport de fluorescence K mesuré plus haut et du nombre de vacances électroniques créées dans la couche K, déduit de la surface totale des raies de conversion K. Du spectre de conversion on déduit les rapports résumés dans le tableau II où x désigne le rapport N_e/N_e 140,

TABLEAU II

Transitions	K/L	L/M	$x = N_e/N_{e140}$
40 keV	$9{,}3 \pm 2$	$2{,}9 \pm 0{,}6$	$0{,}58 \pm 0{,}07$
180 keV	$4{,}9 \pm 1$		$(8{,}3 \pm 0{,}8)\ 10^{-2}$

les N_e étant les nombres totaux d'électrons de conversion de chaque transition.

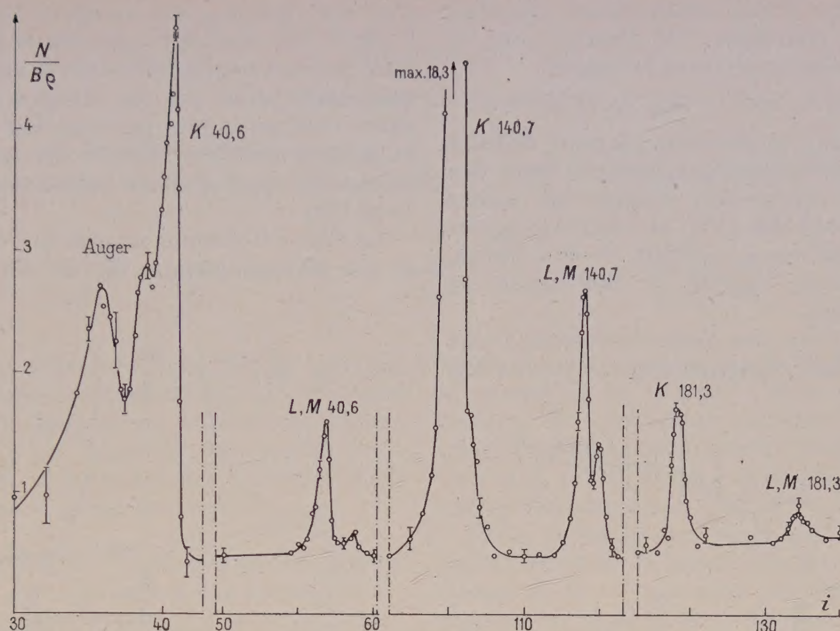


FIG. 6. — Spectre de conversion interne du ^{99}Tc.

Il est à noter que le profil de la raie *K* 180 est légèrement plus large que le profil théorique. Nous n'avons pu disposer de source d'activité spécifique supérieure pour tenter de mettre en évidence un éventuel dédoublement de cette raie.

V. **Photoélectrons.** — La figure 7 donne le spectre de conversion externe obtenu avec la source E_1 pour les transitions de 140 et 180 keV. Les différentes raies se superposent à un fond continu assez important dû principalement aux électrons Compton provenant de la diffusion des photons de 140 keV et dont le maximum de la distribution en énergie se trouve au droit du pic *L* 140. Il est à noter aussi l'existence d'un maximum de ce fond continu vers 50 keV probablement dû aux

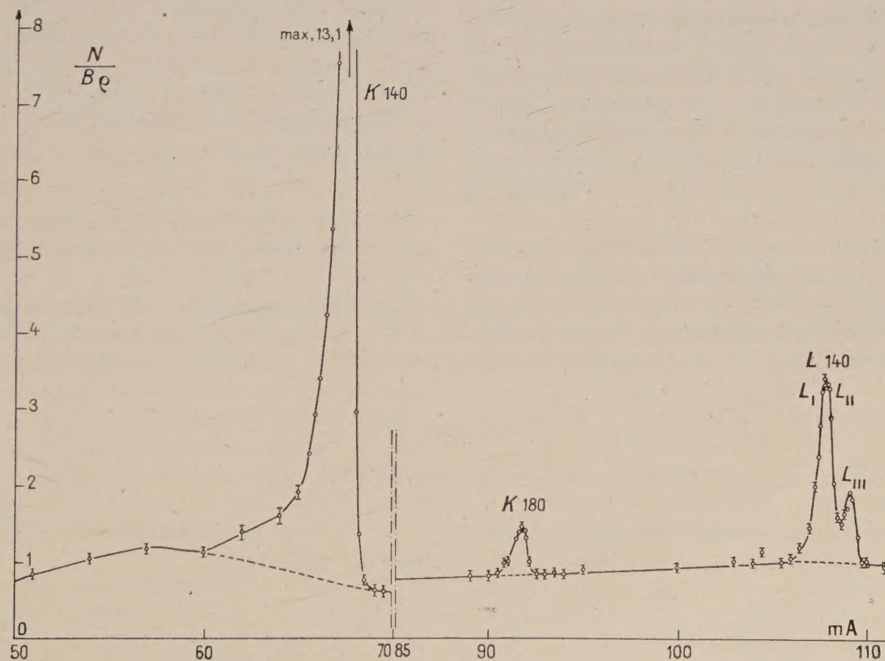


FIG. 7. — Spectre de conversion externe des γ de 140 et 180 keV.

électrons du spectre β non entièrement absorbés par les parois de container. On trouve pour le rapport des intensités en photons la valeur

$$\rho_{180} = N_\gamma 180 / N_\gamma 140 = (6{,}5 \pm 1)\ 10^{-2}.$$

Les N_γ désignent les nombres de photons déduits des nombres de photoélectrons, compte tenu des sections de choc interpolées d'après les tables données par K. Siegbahn [15], et trouvées égales pour chaque transition à $\tau_K(140) = 614$ barns, $\tau_L(140) = 77$ barns, $\tau_K(180) = 309$ barns et $\tau_L(40) = 2\,867$ barns.

La figure 8 donne les pics photoélectriques L dus au gamma de 40 keV, obtenus avec la source E_2.

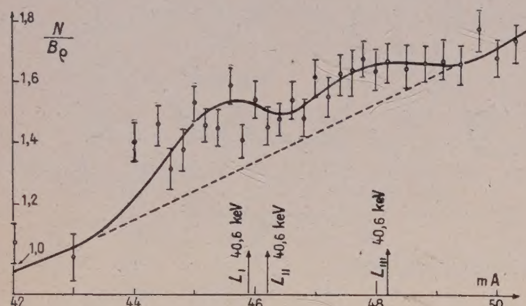


Fig. 8. — Spectre de conversion externe du γ de 40 keV.

Le parcours limite de ces photoélectrons étant de 1,2 mg/cm², les radiateurs utilisés doivent avoir une épaisseur faible. La détermination de la surface du pic est peu précise vu les erreurs statistiques qui sont élevées à cause de l'importance du fond Compton, de la forte valeur du coefficient de conversion et du faible pourcentage de cette transition dans la désintégration. La détermination du rapport $\rho_{40} = N_\gamma 40 / N_\gamma 140$ fait intervenir deux corrections mal connues. La première, pour l'absorption des photons dans la source et la paroi du container est difficile à calculer car il n'y a pas collimation. La deuxième correspond à l'influence du facteur angulaire de la section de choc photoélectrique. Divers mesures ont été faites en faisant varier l'angle entre les directions moyennes des photons et des photoélectrons, ce qui était obtenu par l'orientation donnée à l'ensemble source-radiateur. On peut en déduire, en majorant la marge d'erreur, que ρ_{40} est compris entre $1{,}3.10^{-2}$ et 7.10^{-2}. Par contre l'importance du facteur angulaire devient négligeable dans le rapport ρ_{180} donné plus haut parce que les énergies des quanta sont assez voisines et plus grandes. Ces conclusions sont en accord avec les résultats des travaux sur l'effet photoélectrique publiés récemment par S. Hultberg [16].

La figure 9 obtenue avec la source E_3 montre que le pic photoélectrique K 142 n'a pu être mis en

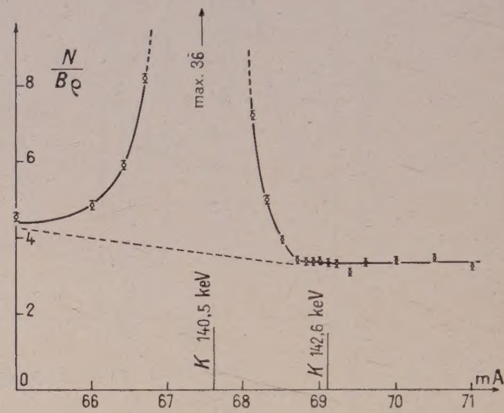


Fig. 9. — Pics photoélectriques K 140 et K 142.

évidence au-dessus du fond continu. Le rapport ρ_{142} nous est donc donné en valeur maximum : $\rho_{142} < 6.10^{-3}$.

A partir des résultats trouvés par conversion interne et externe, il est possible de déterminer les coefficients de conversion interne et les intensités relatives des transitions 40-142-180 keV. Pour cela on a pris comme base le coefficient de conversion de la transition 140 keV qui est bien connu. La valeur donnée par H. Medicus [2] et C. Levi-L. Papineau [1] est en accord avec le caractère M_1 de la transition, soit $\alpha_{140} = 0{,}1$. On a trouvé ainsi :

$$0{,}7 < \alpha_{40} < 5{,}0\ ; \quad \alpha_{142} > 30\ ; \quad \alpha_{180} = 0{,}13 \pm 0{,}03.$$

Les intensités relatives des transitions sont indiquées plus loin à propos de chacune d'elles.

VI. **Interprétation.** — Les coefficients théoriques de conversion interne et les rapports théoriques de coefficients partiaux de conversion interne ont été

TABLEAU III

Transition de 40 keV

	Valeurs théoriques pour				Valeurs expérimentales	
	E_1	E_2	M_1	M_2	Présent travail	Levi et Papineau [1]
	—	—	—	—	—	—
α	1,6	32,1	3,9	96,0	$0{,}7 < \alpha < 5{,}0$	30 ± 10
K/L	7,08	1,4	7,9	4,4	9,3 ± 2	
L/M	2,5	1,9	2,5	2,1	2,9 ± 0,6	

TABLEAU IV

TRANSITION DE 180 keV

	Valeurs théoriques pour						Valeurs expérimentales	
	E_1	E_2	E_3	M_1	M_2	M_3	Présent travail	Levi et Papineau [1]
	—	—	—	—	—	—	—	—
α	$2,5.10^{-2}$	0,143	0,65	0,07	0,34	2,0	0,13 ± 0,03	0,6 ± 0,2
K/L	8,72	6,68	3,9	8,12	7,25	5,37	4,9 ± 1	

calculés d'après les tables de Rose [17] en fonction de la nature probable des transitions. Les tableaux suivants III et IV donnent les valeurs théoriques de ces coefficients ou rapports auxquelles on a ajouté les valeurs expérimentales trouvées dans cette étude et dans d'autres travaux.

Transition 40,6 keV. — Les valeurs expérimentales peuvent correspondre à une transition E_1 ou M_1. Les valeurs théoriques étant assez peu différentes il sera toujours difficile de déterminer par cette méthode la véritable nature de cette transition. De plus, le coefficient de conversion que nous avons obtenu est très peu précis pour les raisons indiquées plus haut. Cependant une transition M_1 est plus probable.

Les N désignant les nombres totaux de transitions ($N = N_e + N_\gamma$) on obtient

$$\frac{N_{40}}{N_{140}} = \frac{N_{e40}}{N_{e140}} \frac{1 + 1/\alpha_{40}}{1 + 1/\alpha_{140}} \simeq (6,7 \pm 1).10^{-2}$$

en prenant pour α_{40} la valeur théorique pour une transition M_1 soit $\alpha_{40} = 3,9$. L'accord de ce résultat avec celui d'Estulin et al. [4] : $(7,5 \pm 1).10^{-2}$, obtenu par une méthode différente, confirme le caractère M_1 de la transition.

Transitions 140 et 142 keV. — La transition de 140 keV est certainement du type M_1 et celle de 142 keV du type M_4. Les valeurs théoriques des coefficients de conversion donnent pour la transition 140 keV : $K/L = 8,1$; $K/L + M = 5,88$ et $L/M = 2,66$. Les valeurs correspondantes ne peuvent être déduites immédiatement, sauf K/L pour lequel on a indiqué ci-dessus $8,3 \pm 0,3$. La proximité de la transition 142 keV conduit (*fig.* 5) à la superposition des raies M 140, L 142 et M 142. On peut cependant estimer la surface du pic M 140 en retranchant, de celle du pic composite, la surface des pics L 142 et M 142, déduite de celle du pic K 142 au moyen du rapport théorique

$$(K/L + M)_{142} = 4,79.$$

On obtient ainsi les valeurs :

$$(K/L + M)_{140} = 5,9 \pm 0,3$$

et $(L/M)_{140} = 2,5 \pm 0,08$. On voit que l'accord est très satisfaisant. Par contre on ne peut évidemment obtenir ainsi les rapports K/L et L/M pour la transition de 142 keV. Nous avons vu que les mesures de conversion externe fournissent seulement une valeur minimum du coefficient de conversion $\alpha_{142} > 30$. Cette valeur est en accord avec la valeur théorique $\alpha = 31,2$.

Enfin le rapport d'embranchement de la cascade 2-40 et de la transition directe 142 peut être déduit de la comparaison des surfaces des pics de conversion interne K. Le rapport de ces surfaces indiqué plus haut est

$$r = \frac{K\ 140}{K\ 142} = 16,0 \pm 0,5. \text{ On en déduit aisément :}$$

$$\frac{N_{140}}{N_{142}} = r.\frac{(1/\alpha_K + 1 + L/K + M/K)_{140}}{(1/\alpha_K + 1 + L/K + M/K)_{142}}.$$

Avec les valeurs théoriques des coefficients de conversion il vient $N\,140/N\,142 = 145 \pm 5$. Cette valeur est très peu sensible aux erreurs sur les divers coefficients de conversion, à l'exception de α_{K140}, mais nous avons vu plus haut que les valeurs théoriques et expérimentales sont en bon accord pour la transition de 140 keV. Le rapport ci-dessus a été donné pour la première fois par Mihelich, Goldhaber et Wilson [18] qui ont trouvé $N\,140/N\,142 = 72$. Leur mesure était faite avec une source assez épaisse par la méthode photographique.

Transition 180 keV. — Les valeurs expérimentales du coefficient de conversion et du rapport K/L sont en accord avec une transition E 2. L'intensité de la transition se déduit de préférence du rapport des intensités en photons :

$$\frac{N_{180}}{N_{140}} = \frac{N_{\gamma180}}{N_{\gamma140}} \frac{1 + \alpha_{180}}{1 + \alpha_{140}} \simeq (6,6 \pm 2,5).10^{-2}.$$

Les deux transitions partant du niveau 180 keV sont donc à peu près également probables ($N_{180} \simeq N_{40}$). On peut calculer les périodes partielles gamma de ces transitions, à partir de la période du niveau 180 keV, mesurée par Lehmann et Miller [19] : $T = (3,5 \pm 0,3).10^{-9}$ s. On n'obtient ainsi, à cause de l'incertitude sur ρ_{40}, qu'un ordre de grandeur pour $T_{\gamma40}$. Si on admet la valeur théorique du coefficient de conversion $\alpha_{40} = 3,9$, il

vient $T_{\gamma 40} \simeq 4.10^{-8}$ s, valeur acceptable pour une transition M_1 [20]. Pour la transition de 180 keV il vient $T_\gamma = (8 \pm 3).10^{-9}$ s. La formule de Weisskopf [20] donne, pour une transition $E2$: 7.10^{-8} s. La transition est donc intensifiée mais nettement moins que les transitions $2^+ \rightarrow 0^+$ des noyaux déformés.

Conclusion. — Les caractéristiques nucléaires du niveau fondamental et des niveaux de 140 et 142 keV sont bien connues et figurées sur le schéma. Si la transition 40,6 keV est une M_1, ce qui est probable, le niveau 180 keV a pour caractéristiques nucléaires 5/2 +, ce qui donne pour la transition de 180 keV le caractère E_2 conforme à nos résultats. Le caractère E_1 de 40,6 keV obligerait à donner à la transition de 180 keV le caractère M_2 qui ne s'accorde pas avec nos mesures.

Notre détermination du coefficient de conversion interne de la transition 180 keV ($\alpha = 0{,}13 \pm 0{,}03$) est en désaccord avec celle de C. Levi et L. Papineau [1] qui ont opéré par coïncidences et qui trouvent $0{,}6 \pm 0{,}2$. Nos résultats lèvent toute objection à l'attribution à cette transition du caractère E_2, et par conséquent du spin 5/2 + au niveau 180 keV. Le désaccord avec les mesures de C. Levi et L. Papineau pourrait s'expliquer si la raie de 180 keV est double. Cependant le pic photoélectrique a un aspect normal, il faudrait donc que la seconde raie soit fortement convertie. Estulin et al. [4] signalent un niveau à 740 keV ou 780 keV ; on pourrait donc avoir une transition de 180 keV entre les niveaux 920 et 740 keV. Cette interprétation est cependant peu probable.

Manuscrit reçu le 28 janvier 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Levi (C.) et Papineau (L.), *C. R. Acad. Sc.*, 1954, **239**, 1782.
[2] Medicus (H.), Maeder (D.) et Schneider (H.), *Helv. Phys. Acta*, 1951, **24**, 72.
[3] Varma (J.) et Mandeville (C.), *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 91.
[4] Estulin (I. V.), Chernov (G. M.) et Pastukhova (Z. V.), *Zh. eksper. teor. Fiz.*, 1958, **35**, 71.
[5] Laberrigue-Frolow (J.) et Radvanyi (P.), *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 944.
[6] Harbottle (G.), *J. Chem. Physics*, 1953, **21**, 1686.
[7] Tribalat (S.) et Beydon (J.), *Anal. Chim. Acta*, 1953, **8**, 22.
[8] Moussa (A.) et Bellicard (J. B.), *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 85 A.
[9] Bellicard (J. B.) Moussa (A.) et Haynes (S. K.), *Nuclear Physics*, 1957, **3**, 307.
[10] Bellicard (J. B.) et Moussa (A.), *J. Physique Rad.*, 1957, **18**, 115.
[11] Pincherle (L.), *Nuovo Cimento*, 1935, **12**, 81.
[12] Rubinstein (R. A.) et Snyder (J. N.), *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 1653.
[13] Broyles (C. D.), Thomas (D. A.) et Haynes (S. K.), *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 715.
[14] Johnson (F. A.) et Foster (J. S.), *Canad. J. Phys.*, 1953, **31**, 469.
[15] Siegbahn (K.), Beta and Gamma Spectroscopy, North Holland Publ. Cy, 1955.
[16] Hultberg (S.), *Ark. f. Fysik*, 1959, **15**, 307.
[17] Rose (M. E.), Internal conversion coefficients, North Holland Publ. Cy, Amsterdam, 1958.
[18] Mihelich (J. W.), Goldhaber (M.) et Wilson (E.), *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 972.
[19] Lehmann (P.) et Miller (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1955, **240**, 1525.
[20] Goldhaber (M.) et Sunyar (A. W.), in Siegbahn K., *loc. cit.*, p. 453 — cf. Nijgh. G. J. Wapstra (A. H.) et Van Lieshout (R.), Nuclear Spectroscopy Tables, North Holland Publ. Cy, Amsterdam, 1959.
[21] Marguin (Mme P.) et Moussa (A.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 149.
[22] Marguin (Mme P.) et Moussa (A.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 17.
[23] Gray (P.), *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 1306.

UNE THÉORIE DES LEPTONS

Par K. H. TZOU,
Institut Henri-Poincaré, Paris.

Résumé. — On propose pour l'électron et le muon un modèle unifié où les deux leptons forment un doublet-M. Cette théorie est basée sur la symétrisation du terme de masse dans l'équation d'un champ spinoriel, qui est soumis encore à une certaine interaction avec lui-même. Ce champ spinoriel comporte deux états de la masse propre qui sont identifiés à l'électron et au muon. Le neutrino à quatre composantes est un cas particulier dans ce modèle des doublets-M. La non-conservation de la parité de l'interaction faible est une conséquence du principe de la symétrie M. Le courant faible leptonique fondamental est du seul type V et ressemble donc parfaitement au courant électrique de l'électron-muon. Les neutrinos associés à l'électron et au muon dans le courant faible sont deux particules à hélicité opposée, qui sont les deux membres d'un neutrino à quatre composantes. On démontre l'existence des solutions de l'équation d'onde fondamentale en ondes planes monochromatiques. La théorie n'apporte pas de modification aux résultats et conclusions classiques de la théorie usuelle de l'électron en physique atomique. On envisage aussi la possibilité d'une généralisation du modèle des doublets-M aux baryons et aux mésons.

Abstract. — A unified model is proposed for the electron and muon, where the two leptons form an M-doublet. The theory is based on the symmetrization of the mass term in the equation of a spinor field, that has also a certain self-coupling. This spinor field has two different rest-mass states, that are identified with the electron and muon. The four-component neutrino is a special case in this M-doublet model. The non-conservation of parity in the weak interaction is a consequence of the M-symmetry principle. The fundamental leptonic weak current is of the type V only and thus resembles exactly the electron-muon electric current. The neutrinos coupled to the electron and muon in the weak current are two particles of opposite helicity, which are the two members of a four-component neutrino. The existence of solutions of the fundamental field equation in monochromatic plane waves is proved. The theory causes no modification on the classic results and conclusions of the usual electron theory in atomic physics. Possible generalization of the M-doublet model to baryons and mesons is also discussed.

1. Introduction. — L'électron e et le muon μ semblent être tous les deux de pures particules de Dirac en ce qui concerne l'interaction électromagnétique. Les nombreuses expériences sur la détermination du moment magnétique du muon ont toutes confirmé que, l'effet radiatif étant réduite, ce moment magnétique est bien égal au magnéton muonique selon la théorie de la seule interaction minimale.

Dans le cas des interactions faibles, les expériences récentes semblent bien confirmer l'hypothèse d'une interaction universelle par le « self-couplage » d'un courant faible du type V-A avec une même constante de couplage pour toutes les parties (leptoniques, baryoniques, mésoniques) de ce courant.

La ressemblance presque parfaite de e et μ semble donc bien établie en ce qui concerne les interactions électromagnétique et faible. En outre, les deux particules ne participent pas aux interactions fortes. Beaucoup d'attention a été donc attirée sur ce doublet de leptons [1], et l'on essaie d'étudier les symétries qui pourraient le souligner [2], [3], [4]. Mais e et μ diffèrent de masse propre, et cette différence de masse est bien trop grande pour qu'on puisse envisager la possibilité qu'elle soit due uniquement à des effets radiatifs de certaines interactions encore inconnues, qui pourraient ainsi distinguer les deux leptons. Dans ce cas, il serait difficile de tenter une théorie unifiée de e et μ dans le cadre des théories usuelles des particules, même en tenant compte des renormalisations des interactions quantifiées.

Au cours de l'étude des invariances des théories des particules par rapport au groupe d'inversion à seize éléments [5]

$$G \equiv \{ P, T, C, M, \text{et combinaisons} \},$$

nous avons remarqué [6] la possibilité de modifier et en même temps généraliser les théories usuelles des particules pour en déduire les champs symétriquement self-couplés vis-à-vis des opérations d'inversion du groupe G. Chacun de ces champs comporte deux états différents de la masse propre. Le champ symétriquement self-couplé vis-à-vis de l'opération M (inversion de la masse) est considéré comme le champ unifié de e et μ, dont les deux valeurs de la masse propre sont identifiées à m_e et m_μ [6]. e et μ forment donc en ce sens un doublet-M. Le neutrino à quatre composantes est un simple cas particulier de ce modèle des doublets-M.

Dans cette théorie unifiée des leptons, le courant leptonique de l'interaction faible ressemble parfai-

tement au courant électrique de l'électron-muon. La non-conservation de la parité est une conséquence d'un principe de la symétrie *M* [6].

Le champ fondamental de l'électron-muon est un champ linéaire. Nous démontrerons l'existence des solutions de ce champ en ondes planes monochromatiques.

Les conditions de la symétrie *M* introduites à l'électron par le présent modèle n'apportent aucune modification aux résultats et conclusions classiques de la théorie usuelle de l'électron et en particulier ceux de la physique atomique.

Le modèle des doublets-*M* pourrait se généraliser aussi aux baryons et aux mésons.

2. **Électron et muon considérés comme un doublet-*M*.** — Dans l'étude de certaines transitions électromagnétiques de e et μ jusqu'ici non observées comme $\mu \to e + \gamma$, $\mu \to e + e + e$, $\mu + N \to e + N$, etc..., on a remarqué que la similitude parfaite de e et μ tend plutôt pour l'interdiction de ces transitions que de les favoriser [2], [3]. En effet, certains types d'interaction électromagnétique de e et μ n'apportent en fin de compte qu'une redéfinition de e et μ sans engendrer par conséquent aucune transition e — μ. Donc, même en présence de ces types d'interaction, e et μ, après une redéfinition adéquate, se comportent toujours comme deux particules non couplées.

Considérons d'abord e et μ sans interaction. Leur lagrangien est

$$\mathcal{L}_l = -\bar{\psi}_e(\gamma_\lambda \partial_\lambda + m_e)\,\psi_e - \bar{\psi}_\mu(\gamma_\lambda \partial_\lambda + m_\mu)\,\psi_\mu. \quad (1)$$

Malgré la similitude de e et μ dans les interactions électromagnétique et faible, la théorie des leptons, du fait de la différence de masse, n'est pas symétrique par e et μ, c'est-à-dire, invariante sous l'échange $\psi_e - \psi_\mu$. Mais une symétrie de ce genre peut bien être établie quand e et μ sont exprimés en deux autres variables ψ et χ définies par (voir [4])

$$\psi_e = \frac{1}{\sqrt{2}}(\psi + \chi), \qquad \psi_\mu = \frac{1}{\sqrt{2}}(\psi - \chi). \quad (2)$$

Par exemple, le lagrangien (1) s'écrira

$$\mathcal{L}_l = -\bar{\psi}(\gamma_\lambda \partial_\lambda + m_1)\,\psi - \bar{\chi}(\gamma_\lambda \partial_\lambda + m_1)\,\chi + m_2(\bar{\psi}\chi + \bar{\chi}\psi), \quad (3)$$

où

$$m_1 = \frac{1}{2}(m_\mu + m_e), \qquad m_2 = \frac{1}{2}(m_\mu - m_e). \quad (4)$$

$\mathcal{L}_l$ est donc symétrique par l'échange $\psi - \chi$.

L'interaction électromagnétique minimale est évidemment symétrique à la fois par l'échange $\psi_e - \psi_\mu$ et par l'échange $\psi - \chi$. Dans le cas des interactions faibles, si l'on adopte l'hypothèse des interactions universelles par le self-couplage des courants faibles du type V-A, Cabibbo et Gatto [4] ont montré que les courants faibles leptoniques sont, eux aussi, symétriques par les échanges $\psi_e - \psi_\mu$ et $\psi - \chi$ à la fois, si seulement deux neutrinos différents et indépendants (à deux ou à quatre composantes) sont supposés associés à e et à μ. Ainsi le système entier des leptons, y comprises les interactions électromagnétique et faible, est invariant par rapport à l'échange $\psi - \chi$ (« symétrie *L* » d'après Cabibbo et Gatto [4]). Les nouvelles variables du système e — μ, ψ et χ, obéissent aux équations

$$\left.\begin{aligned}(\gamma_\lambda \partial_\lambda + m_1)\,\psi &= m_2\,\chi,\\ (\gamma_\lambda \partial_\lambda + m_1)\,\chi &= m_2\,\psi.\end{aligned}\right\} \quad (5)$$

Nous avons dans (5) deux équations qui sont symétriques par l'échange $\psi - \chi$. Nous pouvons bien supposer dans ce cas que ψ et χ satisfont à une seule et même équation de champ sans pourtant être identiques. Dans des études antérieures [5], nous avons montré que les spineurs de l'équation de Dirac sont tous liés les uns aux autres par le groupe d'inversion *G*. Il y a donc lieu de penser que ψ et χ pourraient être deux spineurs liés par une certaine opération d'inversion de ce groupe, ainsi

$$\chi = [G]\psi. \quad (6)$$

L'opération $[G]$ sur ψ désigne le spineur engendré de ψ par l'inversion *G* [5] avec encore un changement de nombres quantiques dans ce spineur engendré, changement impliqué par la définition de *G*. Il y a donc à distinguer l'opération $[G]$ de l'opération (G) que nous avons définie et étudiée antérieurement [5]. Avec (6), les équations (5) s'écrivent

$$\left.\begin{aligned}(\gamma_\lambda \partial_\lambda + m_1)\,\psi &= m_2[G]\psi,\\ (\gamma_\lambda \partial_\lambda + m_1)\,[G]\psi &= m_2\,\psi.\end{aligned}\right\} \quad (7)$$

Mais, dans notre hypothèse, $[G]\psi$ doit obéir à une même équation de champ que ψ, donc

$$(\gamma_\lambda \partial_\lambda + m_1)\,[G]\psi = m_2[G]^2\,\psi. \quad (8)$$

Dans ce cas, une condition de compatibilité s'impose :

$$[G]^2\,\psi = \psi. \quad (9)$$

Nous pouvons démontrer que cette condition de compatibilité peut être remplie quand *G* est l'une quelconque des huit inversions unitaires. Elle est également réalisable pour toutes les inversions anti-unitaires en cas de spins entiers. Mais dans le cas des spins demi-entiers-impairs, elle n'est réalisable que lorsque *G* est *C* ou *PTM*. En outre, des arguments d'ordre physique excluent généralement la réalité physique des champs symétriquement self-couplés vis-à-vis des huit inversions qui ne dépendent pas de *M*. Ceux définis vis-à-vis des huit autres inversions comportant *M* sont bien admis-

sibles au point de vue physique. Parmi ceux-ci, le champ le plus simple est évidemment celui qui est défini vis-à-vis de M elle-même. Ces résultats et conclusions seront publiés à une autre occasion.

Dans la présente étude, nous prenons donc simplement M pour G dans les équations (7). Par définition [5], $[M]\psi(m) \equiv \zeta\gamma_5\, \psi(-m)$, ζ étant une constante, $m \equiv (m_1, m_2)$ et $-m \equiv (-m_1, -m_2)$. On montre facilement que la condition de compatibilité (9) n'est remplie que lorsque $\zeta^2 = 1$. Nous étudions d'abord la première possibilité, $\zeta = +1$. Dans ce cas,

$$\chi(m) = [M]\, \psi(m) \equiv \gamma_5\, \psi(-m). \tag{10}$$

Puis, la première des équations (7) s'écrit

$$\gamma_\lambda\, \partial_\lambda\, \psi(m) + m_1\, \psi(m) = m_2[M]\, \psi(m) = m_2\, \gamma_5\, \psi(-m). \tag{11}$$

Elle est l'équation du champ fondamental ψ de la présente théorie. Cette équation implique évidemment une autre équation,

$$\gamma_\lambda\, \partial_\lambda\, \psi(-m) - m_1\, \psi(-m) = -m_2\, \gamma_5\, \psi(m). \tag{12}$$

On en tire alors l'équation suivante aussi :

$$\gamma_\lambda\, \partial_\lambda [M]\, \psi(m) + m_1[M]\, \psi(m) = m_2\, \psi(m). \tag{13}$$

Définissons maintenant

$$m_e = m_1 - m_2, \qquad m_\mu = m_1 + m_2, \tag{14}$$

$$\left.\begin{aligned} \psi_e(m) &= \frac{1}{\sqrt{2}}(1 + [M])\, \psi(m) \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}}[\psi(m) + \gamma_5\, \psi(-m)], \\ \psi_\mu(m) &= \frac{1}{\sqrt{2}}(1 - [M])\, \psi(m) \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}}[\psi(m) - \gamma_5\, \psi(-m)]. \end{aligned}\right\} \tag{15}$$

On déduit alors de (11) et (13) les équations des champs non couplés,

$$\left.\begin{aligned} \gamma_\lambda\, \partial_\lambda\, \psi_e(m) + m_e\, \psi_e(m) &= 0, \\ \gamma_\lambda\, \partial_\lambda\, \psi_\mu(m) + m_\mu\, \psi_\mu(m) &= 0. \end{aligned}\right\} \tag{16}$$

Le lagrangien (3) devient dans ce cas

$$\begin{aligned} \mathfrak{L}_\psi &= -\overline{\psi}(m)\, (\gamma_\lambda\, \partial_\lambda + m_1)\, \psi(m) \\ &\quad -\overline{\psi}(-m)\, (\gamma_\lambda\, \partial_\lambda - m_1)\, \psi(-m) \\ &\quad + m_2[\overline{\psi}(m)\, \gamma_5\, \psi(-m) - \overline{\psi}(-m)\, \gamma_5\, \psi(m)] \qquad (17a) \\ &= -\overline{\psi}_e(m)\, (\gamma_\lambda\, \partial_\lambda + m_e)\, \psi_e(m) \\ &\quad -\overline{\psi}_\mu(m)\, (\gamma_\lambda\, \partial_\lambda + m_\mu)\, \psi_\mu(m) \qquad (17b) \\ &= -\overline{\psi}_e(-m)\, (\gamma_\lambda\, \partial_\lambda - m_e)\, \psi_e(-m) \\ &\quad -\overline{\psi}_\mu(-m)\, (\gamma_\lambda\, \partial_\lambda - m_\mu)\, \psi_\mu(-m). \qquad (17c) \end{aligned}$$

Nous pouvons maintenant identifier ψ_e à l'électron et ψ_μ au muon, qui sont donc les deux « composantes » d'un seul champ ψ. Ce dernier comporte deux états différents de la masse propre, m_e et m_μ, que nous pouvons identifier aux masses propres de e et de μ. Selon les équations (11) et (12) et le lagrangien (17a), le champ ψ est soumis à un self-couplage sous la forme d'une « interaction non locale par image d'inversion M », si l'on considère m comme une coordonnée aussi [7].

Le lagrangien (17a) nous montre encore que le champ avec $+m$ pour terme de masse, $\psi(m)$, et celui avec $-m$ pour ce terme, $\psi(-m)$, se trouvent mis ensemble et en parallèle dans une seule et même théorie. Dans les théories usuelles des particules, un seul aspect des champs, soit avec $+m$ soit avec $-m$ pour terme de masse, est toujours considéré comme une représentation déjà complète de ces champs. On pourrait trouver insatisfaisante cette situation de l'asymétrie vis-à-vis du terme de masse m, car la symétrie parfaite vis-à-vis de la charge e et des coordonnées de l'espace-temps $(\boldsymbol{r}, t)$, et celles vis-à-vis des grandeurs physiques ou nombres quantiques correspondants, énergie E, impulsion $\boldsymbol{p}$, spin s, etc..., sont bien toujours réalisées dans toutes les théories des particules, surtout quand on peut considérer m comme valeur propre d'une cinquième dimension dans la même manière que $\boldsymbol{p}$ et E sont celles des quatre dimensions de l'espace-temps (cf. [5]). Avec le présent modèle de e et μ, on établit d'une façon satisfaisante la symétrie vis-à-vis de m.

Étant donné que les variables $\psi(m)$ et $\gamma_5\, \psi(-m)$ obéissent à la même équation de champ (11) et sont même mises en couplage dans la présente théorie, elles doivent naturellement avoir les mêmes propriétés de transformation par rapport aux inversions et au groupe de Lorentz. Le champ fondamental ψ est alors invariant par rapport à toutes ces transformations. Mais évidemment les variables $\psi(m)$ et $\psi(-m)$ auront des propriétés de transformation différentes. Ainsi, sous l'inversion de l'espace P par exemple, si

$$\psi(m) \to \eta\gamma_4\, \psi(m), \qquad (\eta\eta^* = 1)$$

alors

$$\psi(-m) \to -\eta\gamma_4\, \psi(-m). \tag{18}$$

L'équation de champ (11) est une équation linéaire. En particulier, si ψ_e et ψ_μ sont des solutions des équations (16) et par conséquent celles de l'équation (11) aussi, il est facile de démontrer que

$$\psi = \alpha_e\, \psi_e + \alpha_\mu\, \psi_\mu$$

est aussi une solution de cette dernière équation. α_e et α_μ sont les amplitudes de probabilité de l'état électron et de l'état muon dans l'état ψ.

3. Quelques cas particuliers. Le neutrino. — Nous étudions maintenant quelques cas particuliers sur m_1 et m_2.

1° $m_2 = 0$. Les deux composantes du doublet, ψ_e et ψ_μ, auront la même masse propre m_1, et le champ ψ lui-même ne sera que le champ de spin 1/2 usuel.

2° $m_1 = 0$. Les deux composantes ψ_e et ψ_μ auront également une même masse propre, m_2. Mais l'équation de l'une a pour terme de masse $+ m_2$ tandis que celle de l'autre a pour ce terme $- m_2$. Cependant, le champ ψ défini maintenant par l'équation

$$\gamma_\lambda \partial_\lambda \psi(m) - m_2 \gamma_5 \psi(-m) = 0 \quad (19)$$

est bien différent du champ de Dirac usuel.

3° $m_2 = m_1$. L'une des deux composantes du doublet, ψ_e, aura une masse propre nulle, tandis que l'autre, ψ_μ, a une masse propre égale à $2m_1$. Ce doublet comporte donc un neutrino à quatre composantes, qui a des caractéristiques assez particulières, car, malgré sa masse propre nulle, il ne comporte pas l'invariance de jauge γ_5 comme la théorie usuelle du neutrino. On a en effet seulement

$$\gamma_5 \psi_e(-m_1, -m_1) = \psi_e(m_1, m_1),$$

mais $\psi_e(m_1, m_1)$ et $\psi_e(-m_1, -m_1)$ ne sont pas identiques bien qu'ils satisfassent à la même équation $\gamma_\lambda \partial_\lambda \psi_e = 0$.

4° $m_2 = - m_1$. C'est le cas contraire au précédent, car ici c'est la composante ψ_μ qui a une masse propre nulle. Tout comme le cas précédent, ψ_μ n'est pas le neutrino habituel et ne comporte pas l'invariance de jauge γ_5. Mais on a

$$\gamma_5 \psi_\mu(-m_1, -m_1) = - \psi_\mu(m_1, m_1)$$

tandis que $\psi_\mu(m_1, m_1)$ et $\psi_\mu(-m_1, -m_1)$ ne sont pas identifiables, bien qu'ils satisfassent également à la même équation $\gamma_\lambda \partial_\lambda \psi_\mu = 0$.

5° $m_1 = m_2 = 0$. Ce sera le champ usuel du neutrino à quatre composantes, que nous désignons par φ :

$$\varphi(-m) = \varphi(m) \equiv \varphi, \qquad \gamma_\lambda \partial_\lambda \varphi = 0. \quad (20)$$

Dans ce cas particulier de la masse propre nulle, l'opération $[M]$ est définie comme la simple multiplication par γ_5 [5]. Ainsi on définit

$$\theta = [M]\varphi \equiv \gamma_5 \varphi,$$

et $\gamma_\lambda \partial_\lambda \theta = 0$ aussi. Comme dans le cas des masses propres non nulles, nous définissons, d'une façon correspondante, les composantes du champ φ,

$$\left.\begin{aligned} \psi_\nu &= \frac{1}{\sqrt{2}}(1 + [M])\,\varphi = \frac{1}{\sqrt{2}}(1 + \gamma_5)\,\varphi, \\ \psi_\omega &= \frac{1}{\sqrt{2}}(1 - [M])\,\varphi = \frac{1}{\sqrt{2}}(1 - \gamma_5)\,\varphi. \end{aligned}\right\} \quad (21)$$

ν est donc la composante d'hélicité négative du neutrino φ et ω celle d'hélicité positive. Le lagrangien du champ du neutrino φ s'écrit évidemment

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_\varphi &= - \overline{\varphi}\, \gamma_\lambda \partial_\lambda \varphi - \overline{\theta}\, \gamma_\lambda \partial_\lambda \theta = - 2 \overline{\varphi}\, \gamma_\lambda \partial_\lambda \varphi \\ &= - \overline{\psi}_\nu \gamma_\lambda \partial_\lambda \psi_\nu - \overline{\psi}_\omega \gamma_\lambda \partial_\lambda \psi_\omega. \end{aligned} \quad (22)$$

Comme e et μ, les neutrinos ν et ω forment un doublet-M aussi. Mais, à la limite de la masse propre nulle, ν et ω ne sont que deux composantes à hélicité opposée du neutrino φ.

4. **Principe de la symétrie M.** — Du fait que $+ m$ et $- m$ se trouvent mises à l'égalité dans la présente théorie, il serait intéressant de préciser de plus près les caractéristiques que comporte cette symétrie.

Nous appellerons les grandeurs M-symétriques celles qui sont invariantes à la fois par rapport à la simple substitution $m_1 \to - m_1$, $m_2 \to - m_2$ (symétrisation M) et à la transformation d'inversion de la masse propre définie par

$$m_1 \to - m_1, \quad m_2 \to - m_2, \quad \psi(m) \to \gamma_5 \psi(-m), \qquad \varphi \to \gamma_5 \varphi. \quad (23)$$

Les lagrangiens $\mathcal{L}_\psi$ et $\mathcal{L}_\varphi$ sont bien de telles grandeurs. Dans ce qui suit, en conformité avec la symétrie de $\pm m$, nous supposerons que toutes les grandeurs physiques doivent être des grandeurs M-symétriques dans la présente théorie.

Pour mieux mettre en évidence la symétrie M, nous pouvons aussi symétriser les champs ψ_e et ψ_μ de la manière suivante :

$$\left.\begin{aligned} \psi_{e1}(m) &= \frac{1}{\sqrt{2}}[\psi_e(m) + \psi_e(-m)], \\ \psi_{e2}(m) &= \frac{1}{\sqrt{2}}[\psi_e(m) - \psi_e(-m)]\,; \\ \psi_{\mu 1}(m) &= \frac{1}{\sqrt{2}}[\psi_\mu(m) + \psi_\mu(-m)], \\ \psi_{\mu 2}(m) &= \frac{1}{\sqrt{2}}[\psi_\mu(m) - \psi_\mu(-m)]. \end{aligned}\right\} \quad (24)$$

Dans ce cas, le lagrangien du champ ψ devient

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_\psi = -\frac{1}{2}\Big\{ & \overline{\psi}_{e1}(m)\, \gamma_\lambda \partial_\lambda \psi_{e1}(m) + \overline{\psi}_{e2}(m)\, \gamma_\lambda \partial_\lambda \psi_{e2}(m) \\ & + m_e[\overline{\psi}_{e1}(m)\, \psi_{e2}(m) + \overline{\psi}_{e2}(m)\, \psi_{e1}(m)] \Big\} \\ & + \text{termes similaires pour } \mu. \end{aligned} \quad (25)$$

Les nouvelles variables $\psi_{e1,2}$ et $\psi_{\mu1,2}$, ainsi que ψ_e et ψ_μ, satisfont aux symétries suivantes :

$$\left.\begin{aligned} [M]\ \psi_e(m) &\equiv \gamma_5 \psi_e(-m) = \psi_e(m), \\ [M]\ \psi_\mu(m) &\equiv \gamma_5 \psi_\mu(-m) = - \psi_\mu(m)\,; \end{aligned}\right\} \quad (26)$$

$$\left.\begin{aligned} [M]\ \psi_{e1}(m) &= \gamma_5 \psi_{e1}(m) = \psi_{e1}(m), \\ [M]\ \psi_{e2}(m) &= - \gamma_5 \psi_{e2}(m) = \psi_{e2}(m)\,; \\ [M]\ \psi_{\mu 1}(m) &= \gamma_5 \psi_{\mu 1}(m) = - \psi_{\mu 1}(m), \\ [M]\ \psi_{\mu 2}(m) &= - \gamma_5 \psi_{\mu 2}(m) = - \psi_{\mu 2}(m). \end{aligned}\right\} \quad (27)$$

L'électron e est donc l'état propre de la symétrie M avec valeur propre $+ 1$ et le muon μ est celui de M avec valeur propre $- 1$ selon les schémas (26). ψ_e et ψ_μ ne sont pourtant pas les états propres proprement dits de γ_5. Seuls les champs M-symétrisés $\psi_{e1,2}$ et $\psi_{\mu1,2}$ le sont, comme

le montrent les relations (27). Ces relations s'écrivent aussi, d'une façon plus explicite,

$$\left.\begin{array}{ll}(1-\gamma_5)\,\psi_{e1}(m)=0, & (1+\gamma_5)\,\psi_{e2}(m)=0,\\ (1+\gamma_5)\,\psi_{\mu 1}(m)=0, & (1-\gamma_5)\,\psi_{\mu 2}(m)=0.\end{array}\right\} \quad (28)$$

En fait, $\psi_{e1,2}$ et $\psi_{\mu 1,2}$ sont les composantes à hélicité bien définie — dans l'approximation extrême-relativiste — du champ ψ :

$$\left.\begin{array}{ll}\psi_{e1}(m) & = \frac{1}{2}(1+\gamma_5)\,[\psi(m)+\psi(-m)]\\ & = \frac{1}{\sqrt{2}}(1+\gamma_5)\,\psi_e(m),\\ \psi_{e2}(m) & = \frac{1}{2}(1-\gamma_5)\,[\psi(m)-\psi(-m)]\\ & = \frac{1}{\sqrt{2}}(1-\gamma_5)\,\psi_e(m)\,;\\ \psi_{\mu 1}(m) & = \frac{1}{2}(1-\gamma_5)\,[\psi(m)+\psi(-m)]\\ & = \frac{1}{\sqrt{2}}(1-\gamma_5)\,\psi_\mu(m),\\ \psi_{\mu 2}(m) & = \frac{1}{2}(1+\gamma_5)\,[\psi(m)-\psi(-m)]\\ & = \frac{1}{\sqrt{2}}(1+\gamma_5)\,\psi_\mu(m).\end{array}\right\} \quad (29)$$

Des relations (29) s'ensuivent les relations (28) automatiquement.

Les propriétés de symétrie des champs de l'électron et du muon résumées plus haut expriment bien les caractéristiques essentielles du présent modèle des leptons. Les conditions de la symétrie M sur e et μ, (26) et (27) ou (28), distinguent cette théorie des théories usuelles de e et μ comme particules indépendantes, car, dans celles-ci, les champs de e et de μ ne comportent pas cette série de symétries. Malgré cela, ces conditions de la symétrie M ne modifient en rien les résultats et conclusions classiques de la théorie usuelle de l'électron en physique atomique.

5. **Interaction électromagnétique.** — Dans une étude précédente [6], nous avons montré que le vecteur courant électrique de l'électron-muon prend l'expression M-symétrique suivante :

$$\left.\begin{array}{l} j_\lambda = j_\lambda(m) + j_\lambda(-m) = j_{e\lambda}(m) + j_{\mu\lambda}(m),\\ j_\lambda(m) = ie\,\overline{\psi}(m)\,\gamma_\lambda\,\psi(m), \text{ etc},\\ j_{e\lambda}(m) = ie\,\overline{\psi}_e(m)\,\gamma_\lambda\,\psi_e(m), \text{ etc.}\end{array}\right\} \quad (30)$$

Toutes ces composantes du courant satisfont à l'équation de conservation. A l'aide de (24), les courants de e et μ s'écrivent encore

$$\left.\begin{array}{l} j_{e\lambda}(m) = j_{e1\lambda}(m) + j_{e2\lambda}(m),\\ j_{\mu\lambda}(m) = j_{\mu 1\lambda}(m) + j_{\mu 2\lambda}(m),\\ j_{e1\lambda}(m) = ie\,\overline{\psi}_{e1}(m)\,\gamma_\lambda\,\psi_{e1}(m), \text{ etc},\\ j_{\mu 1\lambda}(m) = ie\,\overline{\psi}_{\mu 1}(m)\,\gamma_\lambda\,\psi_{\mu 1}(m), \text{ etc.}\end{array}\right\} \quad (31)$$

Les composantes d'hélicité opposée de ψ_e et de ψ_μ contribuent donc toutes et équitablement aux courants électriques de e et de μ. Ceci n'est pas le cas du courant des leptons dans l'interaction faible, comme nous allons voir au paragraphe suivant.

Il n'y a pas de termes croisés dans le courant électrique j_λ. Les composantes $j_\lambda(m)$, $j_\lambda(-m)$, $j_{e\lambda}(m)$, $j_{\mu\lambda}(m)$ sont toutes des vecteurs par rapport à la transformation de Lorentz et à P. Mais $j_{e1\lambda}$ et $j_{e2\lambda}$, ainsi que $j_{\mu 1\lambda}$ et $j_{\mu 2\lambda}$, sont l' « image d'inversion » l'un de l'autre par rapport à P, car, selon (18),

$$j_{e1\lambda} \overset{P}{\rightleftarrows} j_{e2\lambda}, \qquad j_{\mu 1\lambda} \overset{P}{\rightleftarrows} j_{\mu 2\lambda}. \quad (32)$$

6. **Interaction faible leptonique et non-conservation de la parité.** — Nous supposons (i) l'hypothèse du self-couplage d'un courant faible, (ii) une constante de couplage universelle pour toutes les parties de ce courant, et (iii) le principe de la symétrie M. Alors, dans le présent modèle des leptons, comme nous avons montré dans une étude précédente [6], la partie leptonique du courant faible prend pour expression [1]

$$\left.\begin{array}{l} J_\lambda^{(l)} = \overline{\psi}(m)\,\gamma_\lambda\,\varphi + \overline{\psi}(-m)\,\gamma_\lambda\,\varphi\\ \quad = \overline{\psi}_e(m)\,\gamma_\lambda\,\psi_\nu + \overline{\psi}_\mu(m)\,\gamma_\lambda\,\psi_\omega\\ \quad = \frac{1}{\sqrt{2}}\,\overline{\psi}_e(m)\,\gamma_\lambda(1+\gamma_5)\,\varphi\\ \qquad + \frac{1}{\sqrt{2}}\,\overline{\psi}_\mu(m)\,\gamma_\lambda(1-\gamma_5)\,\varphi\\ \quad = \frac{1}{2}\,\overline{\psi}_{e1}(m)\,\gamma_\lambda(1+\gamma_5)\,\varphi + \frac{1}{2}\,\overline{\psi}_{\mu 1}(m)\,\gamma_\lambda\,(1-\gamma_5)\,\varphi.\end{array}\right\} \quad (33)$$

Aux discussions de l'étude précédente [6] sur les caractéristiques essentielles de l'interaction faible des leptons dans le présent modèle, nous pouvons ajouter quelques remarques suivantes.

1° Les composantes d'hélicité bien définie de e et μ, ψ_{e2} et $\psi_{\mu 2}$, ne participent pas à l'interaction faible, comme on pouvait s'y attendre à cause de la participation du neutrino.

2° Rosen a montré [8] qu'avec l'hypothèse (33) où les neutrinos ν et ω associés respectivement à e et à ω ont des hélicités opposées, le spectre de l'électron de la désintégration du muon n'est pas en désaccord avec les expériences. On doit examiner encore de plus près toutes les conséquences d'une telle hypothèse, par exemple la capture de μ^- par les noyaux.

3° Des expériences précises seront nécessaires

(1) Si nous prenions au début

$$J_\lambda^{(l)} = \overline{\psi}(m)\,\gamma_\lambda\,\varphi - \overline{\psi}(-m)\,\gamma_\lambda\,\varphi.$$

au lieu de (33), alors $J_\lambda^{(l)}$ serait M-antisymétrique, ce qui d'ailleurs n'empêche pas l'interaction faible d'être M-symétrique. Dans ce cas, ν serait associé à μ et ω à e.

pour la détermination de l'hélicité du muon dans la désintégration du méson π en vue d'examiner si ν et ω ont une même hélicité ou des hélicités différentes. (Voir par exemple [9].)

4° Les règles de sélection impliquées dans le principe de la symétrie M et d'autres conséquences de cette symétrie sont à étudier. (Voir par exemple [4] et note supplémentaire du présent article.)

5° Au paragraphe 2, nous avons montré que les variables $\psi(m)$ et $\psi(-m)$ ont des propriétés de transformation différentes, par exemple sous P. Par conséquent, $J_\lambda^{(l)}$ n'est pas un simple vecteur et l'interaction faible des leptons ne conserve pas la parité d'après la présente théorie. Ce fait est une conséquence du principe de la symétrie M. De plus, la non-conservation de la parité atteint-elle le degré maximal dans le présent modèle.

6° Après la découverte de la non-conservation de la parité ainsi que de l'asymétrie maximale de la distribution des électrons dans la désintégration β, on a tout de suite pensé à la théorie à deux composantes du neutrino en vue de donner à cette caractéristique des interactions faibles des leptons une explication et un fondement théoriques [10]. Avec le présent modèle des leptons, nous nous trouvons devant une autre alternative possible d'une telle tentative. La non-conservation de la parité est, dans ce modèle, une conséquence du principe de la symétrie M. Il n'y est donc plus besoin de la théorie à deux composantes du neutrino, et au contraire, la théorie à quatre composantes est nécessaire pour la réalisation de la symétrie M.

D'autre part, le cas de la masse propre nulle mis à part, les théories usuelles des particules sont toutes invariantes par rapport à toutes les inversions. Aucune théorie des particules de masse propre non nulle n'est une représentation d'un certain sous-groupe d'inversion seulement. Nous pensons donc que, dans une théorie satisfaisante des interactions faibles, le neutrino devrait être représenté aussi par une théorie qui est une représentation du groupe d'inversion complet, c'est-à-dire, plutôt par la théorie à quatre composantes que par celle à deux composantes. Cela est d'ailleurs bien le cas d'une autre particule de masse propre nulle, le photon, car l'électrodynamique comporte bien une théorie à six composantes du photon mais non pas celle à trois composantes. Quant à une explication ou un fondement possible de la non-conservation de la parité dans les interactions faibles, on ne devrait peut-être pas les chercher dans la représentation d'une certaine particule participante elle-même, mais plutôt dans certains principes fondamentaux, dont celui de la symétrie M par exemple, qui pourraient régir les interactions faibles. D'ailleurs, beaucoup de processus non neutriniques ne conservent pas, eux non plus, la parité dans les interactions faibles. Nous verrons plus loin que la non-conservation de la parité dans de tels processus apparaît aussi comme la conséquence du principe de la symétrie M. Cette symétrie M est donc un principe d'une portée et d'une applicabilité beaucoup plus grandes que la théorie à deux composantes du neutrino en ce qui concerne une explication possible de la non-conservation de la parité des interactions faibles. A ce propos, une idée pareille, bien que différente de la nôtre, a été proposée par Sakurai aussi [11].

7. Équations d'onde du second ordre.

— Dans ce paragraphe et au suivant, nous examinerons un peu l'équation d'onde (11) elle-même. Nous commençons par les équations du second ordre qui en seront déduites. Mettons dans les équations (11) et (12)

$$\psi_\pm = \frac{1}{\sqrt{2}}\,[\psi(m) \pm \psi(-m)]. \tag{34}$$

Ces équations deviennent

$$\gamma_\lambda\, \partial_\lambda\, \psi_\pm + (m_1 \pm m_2\, \gamma_5)\, \psi_\mp = 0. \tag{35}$$

L'opération par $\gamma_\lambda\, \partial_\lambda$ sur ces équations nous donne alors

$$\partial^2\, \psi_\pm - (m_1^2 + m_2^2 \mp 2 m_1\, m_2\, \gamma_5)\, \psi_\pm = 0. \tag{36}$$

Mettons d'autre part

$$\psi_{+\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}}\,(1 \pm \gamma_5)\, \psi_+, \quad \psi_{-\pm} \frac{1}{\sqrt{2}}\,(1 \pm \gamma_5)\, \psi_-. \tag{37}$$

Nous tirons de (36) les équations suivantes :

$$\left.\begin{aligned} (\partial^2 - m_e^2)\,(\psi_{++} \text{ et } \psi_{--}) &= 0, \\ (\partial^2 - m_\mu^2)\,(\psi_{+-} \text{ et } \psi_{-+}) &= 0. \end{aligned}\right\} \tag{38}$$

Ce sont les équations d'onde du second ordre qu'on peut déduire de l'équation de champ fondamentale (11). Ces équations montrent clairement l'existence de deux masses propres m_e et m_μ et que ψ_{++} et ψ_{--} ne sont que les composantes de ψ_e et ψ_{+-} et ψ_{-+} celles de ψ_μ.

8. Ondes planes monochromatiques. Signification physique des conditions de la symétrie M.

— Nous allons maintenant démontrer que les solutions existent de l'équation d'onde fondamentale (11) en ondes planes monochromatiques. Mettons d'abord

$$\psi(\boldsymbol{p}, E\,;\, \boldsymbol{r}, t, \pm m) = u(\boldsymbol{p}, E\,;\, \pm m)\, e^{i(\boldsymbol{p}\cdot\boldsymbol{r} - Et)}. \tag{39}$$

Les équations (11) et (12) deviennent

$$(i\gamma_\lambda\, p_\lambda \pm m_1)\, u(\boldsymbol{p}, E\,;\, \pm m) = \pm\, m_2\, \gamma_5\, u(\boldsymbol{p}, E\,;\, \mp m). \tag{40}$$

Mettons d'autre part

$$u_\pm(\boldsymbol{p}, E\,;\, m) = \frac{1}{\sqrt{2}}\,[u(\boldsymbol{p}, E\,;\, m) \pm u(\boldsymbol{p}, E\,;\, -m)]. \tag{41}$$

Nous aurons alors

$$i\gamma_\lambda\, p_\lambda\, u_\pm(\boldsymbol{p}, E\,;\, m) + (m_1 \pm m_2\, \gamma_5)\, u_\mp(\boldsymbol{p}, E\,;\, m) = 0. \tag{42}$$

L'opération de $i\gamma_\lambda p_\lambda$ par la gauche sur (42) nous donne

$$(p_\lambda p_\lambda + m_1^2 + m_2^2)\, u_\pm(\boldsymbol{p}, E\,;\, m) \mp 2m_1 m_2 \gamma_5 u_\pm(\boldsymbol{p}, E\,;\, m) = 0. \quad (43)$$

Mais γ_5 a pour valeurs propres ± 1. Les spineurs $u_\pm$ ne peuvent avoir de solutions non triviales que lorsque

$$p_\lambda p_\lambda + m_1^2 + m_2^2 = \pm 2m_1 m_2. \quad (44)$$

Il existe donc deux sortes d'ondes planes pour (39), qui correspondent aux deux valeurs propres de la masse propre, $m_e = m_1 - m_2$ et $m_\mu = m_1 + m_2$. A une impulsion $\boldsymbol{p}$ correspondent alors deux énergies possibles, E_e et E_μ,

$$E_e^2 = p^2 + m_e^2, \qquad E_\mu^2 = p^2 + m_\mu^2. \quad (45)$$

Dans ce cas, les équations (43) s'écrivent simplement, à l'aide de (44),

$$\left.\begin{aligned} (1 - \gamma_5)\, u_+(\boldsymbol{p}, E_e\,;\, m) &= 0,\\ (1 + \gamma_5)\, u_-(\boldsymbol{p}, E_e\,;\, m) &= 0\,;\\ (1 + \gamma_5)\, u_+(\boldsymbol{p}, E_\mu\,;\, m) &= 0,\\ (1 - \gamma_5)\, u_-(\boldsymbol{p}, E_\mu\,;\, m) &= 0. \end{aligned}\right\} \quad (46)$$

Maintenant, si nous posons

$$\left.\begin{aligned} u_{+\pm}(\boldsymbol{p}, E\,;\, m) &= \frac{1}{\sqrt{2}}(1 \pm \gamma_5)\, u_+(\boldsymbol{p}, E\,;\, m),\\ u_{-\pm}(\boldsymbol{p}, E\,;\, m) &= \frac{1}{\sqrt{2}}(1 \pm \gamma_5)\, u_-(\boldsymbol{p}, E\,;\, m). \end{aligned}\right\} \quad (47)$$

Nous aurons alors

$$\left.\begin{aligned} i\gamma_\lambda p_{e\lambda}\, u_{++}(\boldsymbol{p}, E_e\,;\, m) + m_e u_{--}(\boldsymbol{p}, E_e\,;\, m) &= 0,\\ i\gamma_\lambda p_{e\lambda}\, u_{--}(\boldsymbol{p}, E_e\,;\, m) + m_e u_{++}(\boldsymbol{p}, E_e\,;\, m) &= 0\,; \end{aligned}\right\} \quad (48)$$

$$\left.\begin{aligned} i\gamma_\lambda p_{\mu\lambda}\, u_{+-}(\boldsymbol{p}, E_\mu\,;\, m) + m_\mu u_{-+}(\boldsymbol{p}, E_\mu\,;\, m) &= 0,\\ i\gamma_\lambda p_{\mu\lambda}\, u_{-+}(\boldsymbol{p}, E_\mu\,;\, m) + m_\mu u_{+-}(\boldsymbol{p}, E_\mu\,;\, m) &= 0. \end{aligned}\right\} \quad (49)$$

où $p_{e\lambda} = (\boldsymbol{p}, E_e)$, $p_{\mu\lambda} = (\boldsymbol{p}, E_\mu)$. Il est évident maintenant que

$$u_e(\boldsymbol{p}, E_e\,;\, \pm m) = \frac{1}{2}[u_{++}(\boldsymbol{p}, E_e\,;\, m) \pm u_{--}(\boldsymbol{p}, E_e\,;\, m)], \quad (50)$$

$$u_\mu(\boldsymbol{p}\,;\, E_\mu\,;\, \pm m) = \frac{1}{2}[u_{+-}(\boldsymbol{p}, E_\mu\,;\, m) \pm u_{-+}(\boldsymbol{p}, E_\mu\,;\, m)], \quad (51)$$

sont les spineurs des ondes planes de e et μ respectivement, c'est-à-dire que

$$\psi_e(\boldsymbol{p}, E_e\,;\, \boldsymbol{r}, t, \pm m) = u_e(\boldsymbol{p}, E_e\,;\, \pm m)\, e^{i(\boldsymbol{p}\cdot\boldsymbol{r} - E_e t)}, \quad (52)$$

$$\psi_\mu(\boldsymbol{p}, E_\mu\,;\, \boldsymbol{r}, t, \pm m) = u_\mu(\boldsymbol{p}, E_\mu\,;\, \pm m)\, e^{i(\boldsymbol{p}\cdot\boldsymbol{r} - E_\mu t)}. \quad (53)$$

Selon (47), (50) et (51), on montre que

$$\gamma_5 u_e(\boldsymbol{p}, E_e\,;\, -m) = +\, u_e(\boldsymbol{p}, E_e\,;\, m), \quad (54)$$

$$\gamma_5 u_\mu(\boldsymbol{p}, E_\mu\,;\, -m) = -\, u_\mu(\boldsymbol{p}, E_\mu\,;\, m). \quad (55)$$

Nous pouvons vérifier que (52) et (53), avec (50) et (51), sont bien les solutions dans la présente théorie de e et μ, car elles satisfont non seulement aux équations d'onde (16), mais aussi, grâce à (54) et (55), aux conditions de la symétrie M, (26).

Il est pourtant à remarquer que les relations (54), et (55) doivent être vérifiées indépendamment des nombres quantiques $\boldsymbol{p}$, E et s (spin). Il s'agit donc par là des normalisations uniformes des ondes planes monochromatiques sous l'opération M que nous avons étudiées dans un article récent [12]. Nous y avons montré que, sous l'opération de toutes les inversions unitaires dont M, la normalisation uniforme indépendante des nombres quantiques ne peut être réalisée que par deux possibilités différentes qui sont représentées justement par les schémas (54) et (55). Ceci montre donc que la présente théorie est bien une théorie compatible.

Pourtant, dans le présent modèle des leptons, les ondes planes de l'électron doivent non seulement être uniformément normalisées mais encore doivent l'être toujours selon une seule possibilité, celle de (54). Il en est de même pour les ondes planes du muon, qui doivent être uniformément normalisées toujours selon l'autre possibilité, celle de (55). Dans les théories usuelles de e et μ comme particules indépendantes, d'abord il n'y a pas lieu de procéder à une normalisation uniforme quelconque, dans un cas ou dans l'autre. Même si l'on était amené à le faire, les deux possibilités d'une telle normalisation y doivent être toutes permises.

Selon (54) et (55) ou plus généralement (26), un état propre du champ $\psi_e(-m)$ et l'état propre correspondant du champ $\psi_e(m)$ doivent avoir, à un signe près, toujours une même amplitude [12]. Il en est de même dans le cas du muon. Tout cela est une conséquence de la symétrie M du présent modèle des leptons.

Nous remarquons finalement que les conditions de la symétrie M, (26) ou (54)-(55), introduites sur le champ de l'électron et sur celui du muon par le présent modèle des leptons ne causent aucune modification aux résultats et conclusions classiques des théories usuelles de e et μ, et en particulier ceux de la physique atomique ; ceci parce que ces théories usuelles ne sont basées que sur les champs $\psi_e(m)$ et $\psi_\mu(m)$ et ne tiennent pas compte des champs $\psi_e(-m)$ et $\psi_\mu(-m)$ dans une manière symétrique. Les conditions de la symétrie M, (26) ou (54)-(55), ne touchent donc pas ces théories usuelles. Cependant, il serait peut-être intéressant d'étudier les conséquences possibles de ces conditions de la symétrie M dans le domaine classique comme la physique atomique en supposant ce nouveau modèle de l'électron au lieu de la théorie usuelle.

9. **Doublet M'**. — Jusqu'ici nous n'avons considéré que la seule possibilité $\zeta = +1$ dans la définition de $[M]\,\psi(m)$ (voir § 2). Il est intéressant d'étudier l'autre possibilité $\zeta = -1$ aussi. On suppose toujours que m_1 et m_2 sont deux cons-

tantes positives. Dans ce cas, au lieu de (11), l'équation du champ fondamentale s'écrira

$$\gamma_\lambda \partial_\lambda \psi'(m) + m_1 \psi'(m) = - m_2 \gamma_5 \psi'(-m). \quad (56)$$

Les deux états différents de la masse propre seront

$$\left.\begin{aligned} \psi'_e(m) &= \frac{1}{\sqrt{2}} [\psi'(m) - \gamma_5 \psi'(-m)], \\ \psi'_\mu(m) &= \frac{1}{\sqrt{2}} [\psi'(m) + \gamma_5 \psi'(-m)], \end{aligned}\right\} \quad (57)$$

dont les valeurs de masse sont toujours

$$m_e = m_1 - m_2 \text{ et } m_\mu = m_1 + m_2$$

respectivement. Nous dirons dans ce cas que e' et μ' forment un doublet-M'.

Il y a une différence essentielle entre un doublet-M et un doublet-M'. Dans le premier cas, le membre le plus léger du doublet, e, est « symétrique » vis-à-vis de γ_5, tandis que celui plus lourd, μ, est « antisymétrique » selon les schémas (26). Le doublet-M' est le cas contraire, où le membre plus lourd, μ', est symétrique vis-à-vis de γ_5 mais celui plus léger, e', antisymétrique, à savoir

$$\left.\begin{aligned} \gamma_5 \psi'_e(-m) &= - \psi'_e(m), \\ \gamma_5 \psi'_\mu(-m) &= + \psi'_\mu(m). \end{aligned}\right\} \quad (58)$$

Ainsi, les ondes planes devront-elles maintenant être uniformément normalisées non plus selon (54)-(55) mais selon

$$\left.\begin{aligned} \gamma_5 u'_e(\boldsymbol{p}, E_e ; -m) &= - u'_e(\boldsymbol{p}, E_e ; m), \\ \gamma_5 u'_\mu(\boldsymbol{p}, E_\mu ; -m) &= + u'_\mu(\boldsymbol{p}, E_\mu ; m). \end{aligned}\right\} \quad (59)$$

Cette différence de symétrie des deux sortes de doublet de masse implique des propriétés physiques très différentes dans les deux cas. Ainsi, dans le courant faible des leptons, au lieu de (33), c'est maintenant le membre plus lourd, μ', qui est associé au neutrino d'hélicité négative, ν, et celui plus léger, e', associé au neutrino d'hélicité positive, ω.

10. Généralisation possible du modèle des doublets-M aux baryons et aux mésons. — Dans le modèle des leptons proposé aux paragraphes précédents, la non-conservation de la parité est une conséquence du principe de la symétrie M. Il n'est donc pas besoin de la théorie à deux composantes du neutrino pour que, du point de vue théorique, l'interaction faible leptonique ne conserve pas la parité. Ceci constitue un aspect satisfaisant de ce modèle.

Mais dans l'interaction faible interviennent aussi les baryons et les mésons. Pour une théorie vraiment satisfaisante de l'interaction faible, on pourrait envisager une théorie qui généraliserait aussi aux baryons et aux mésons le modèle unifié des leptons. Ainsi, on pourrait supposer que baryons et mésons formeraient eux aussi des doublets-M ou M' comme dans le cas e — μ. Goldhaber a eu aussi une idée pareille [1]. Les deux membres de chaque doublet-M peuvent avoir des masses propres très différentes. Comme nous allons voir, nous citons, à titre d'exemple, (p, Ξ^c_-) et (n, Ξ^c_0), qui pourraient former deux doublets-M. La question ne serait pas simple dans le cas des baryons et des mésons, car il faut tenir compte aussi des interactions fortes, du spin isobarique et de l'étrangeté. Cependant, comme nous verrons plus loin, l'étrangeté ne constituerait pas nécessairement un obstacle à la généralisation du modèle étudié.

Dans la perspective d'une possibilité de cette généralisation, il est intéressant d'étudier les courants faibles de type général qui puissent être formés de deux doublets-M ou M', Ψ et Φ, dont les masses propres $m \equiv (m_1, m_2)$ et $m' \equiv (m'_1, m'_2)$, à la différence des doublets leptoniques ψ et φ, ne sont pas nulles toutes les deux. En conformité au principe de la symétrie M (§ 4), le courant faible de type général $(\overline{\Psi}\ \Phi)$ doit s'écrire

$$J_\lambda = \frac{1}{2}[\overline{\Psi}(m)\, \Omega_\lambda\, \Phi(m') + \overline{\Psi}(-m)\, \Omega_\lambda\, \Phi(-m') + \overline{\Psi}(m)\, \Omega_\lambda\, \Phi(-m') + \overline{\Psi}(-m)\, \Omega_\lambda\, \Phi(m')], \quad (60)$$

où $\Omega_\lambda = \gamma_\lambda(1 + \alpha\gamma_5)$ [6]. Dans J_λ, les deux premiers termes sont des vecteurs mais les deux derniers des pseudo-vecteurs. Le courant faible J_λ ne conserve donc pas la parité. Comme dans le cas du doublet e — μ, nous définissons les nouvelles variables des champs Ψ et Φ de la manière suivante :

$$\left.\begin{aligned} \Psi_a(m) &= \frac{1}{\sqrt{2}} [\Psi(m) + [M]\, \Psi(m)] \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} [\Psi(m) + \gamma_5 \Psi(-m)], \\ \Psi_b(m) &= \frac{1}{\sqrt{2}} [\Psi(m) - [M]\, \Psi(m)] \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} [\Psi(m) - \gamma_5 \Psi(-m)], \end{aligned}\right\} \quad (61)$$

et les expressions similaires pour $\Phi_a(m')$ et $\Phi_b(m')$. D'autre part, nous définissons encore les variables :

$$\left.\begin{aligned} \Psi_{a1}(m) &= \frac{1}{\sqrt{2}} [\Psi_a(m) + \Psi_a(-m)] \\ &= \frac{1}{2} (1 + \gamma_5) [\Psi(m) + \Psi(-m)] = \frac{1}{\sqrt{2}} (1 + \gamma_5)\, \Psi_a(m), \\ \Psi_{a2}(m) &= \frac{1}{\sqrt{2}} [\Psi_a(m) - \Psi_a(-m)] \\ &= \frac{1}{2} (1 - \gamma_5) [\Psi(m) - \Psi(-m)] = \frac{1}{\sqrt{2}} (1 - \gamma_5)\, \Psi_a(m), \\ \Psi_{b1}(m) &= \frac{1}{\sqrt{2}} [\Psi_b(m) + \Psi_b(-m)] \\ &= \frac{1}{2} (1 - \gamma_5) [\Psi(m) + \Psi(-m)] = \frac{1}{\sqrt{2}} (1 - \gamma_5)\, \Psi_b(m), \\ \Psi_{b2}(m) &= \frac{1}{\sqrt{2}} [\Psi_b(m) - \Psi_b(-m)] \\ &= \frac{1}{2} (1 + \gamma_5) [\Psi(m) - \Psi(-m)] = \frac{1}{\sqrt{2}} (1 + \gamma_5)\, \Psi_b(m), \end{aligned}\right\} \quad (62)$$

et les expressions similaires pour $\Phi_{a1,2}(m')$ et $\Phi_{b1,2}(m')$. Cela étant, il est facile de démontrer que les deux premiers termes de (60) s'écrivent maintenant

$$\frac{1}{4}\left[\overline{\Psi}_{a1}(m)\,\Omega_\lambda\,\Phi_{a1}(m') + \overline{\Psi}_{a2}(m)\,\Omega_\lambda\,\Phi_{a2}(m') + \overline{\Psi}_{b1}(m)\,\Omega_\lambda\,\Phi_{b1}(m') + \overline{\Psi}_{b2}(m)\,\Omega_\lambda\,\Phi_{b2}(m')\right]. \quad (63)$$

Mais les deux autres termes de (60) deviennent

$$\frac{1}{4}\left[\overline{\Psi}_{a1}(m)\,\Omega_\lambda\,\Phi_{a1}(m') - \overline{\Psi}_{a2}(m)\,\Omega_\lambda\,\Phi_{a2}(m') + \overline{\Psi}_{b1}(m)\,\Omega_\lambda\,\Phi_{b1}(m') - \overline{\Psi}_{b2}(m)\,\Omega_\lambda\,\Phi_{b2}(m')\right]. \quad (64)$$

Nous avons donc finalement (²)

$$\begin{aligned} J_\lambda &= \frac{1}{2}\overline{\Psi}_{a1}(m)\,\Omega_\lambda\,\Phi_{a1}(m') + \frac{1}{2}\overline{\Psi}_{b1}(m)\,\Omega_\lambda\,\Phi_{b1}(m') \\ &= \frac{1}{2}\overline{\Psi}_a(m)\,\Omega_\lambda\,(1+\gamma_5)\,\Phi_a(m') + \frac{1}{2}\overline{\Psi}_b(m)\,\Omega_\lambda\,(1-\gamma_5)\,\Phi_b(m') \\ &= \frac{1}{2}(1+\alpha)\,\overline{\Psi}_a(m)\,\gamma_\lambda(1+\gamma_5)\,\Phi_a(m') + \frac{1}{2}(1-\alpha)\,\overline{\Psi}_b(m)\,\gamma_\lambda(1-\gamma_5)\,\Phi_b(m'). \end{aligned} \quad (65)$$

Mais on a $\alpha = 0$ selon l'hypothèse d'une constante de couplage universelle. Dans ce cas, $\Omega_\lambda = \gamma_\lambda$, et

$$J_\lambda = \frac{1}{2}\overline{\Psi}_a(m)\,\gamma_\lambda(1+\gamma_5)\,\Phi_a(m') + \frac{1}{2}\overline{\Psi}_b(m)\,\gamma_\lambda(1-\gamma_5)\,\Phi_b(m'). \quad (66)$$

Lorsque $m'_1 = m'_2 = 0$, les expressions (60) et (66) se réduisent toutes les deux à un courant faible du type (33), comme on pouvait s'y attendre. Dans le courant faible (66), en tenant compte de l'étrangeté, on pourrait identifier par exemple Ψ_a à p et Ψ_b à Ξ^c_-, qui formeraient un doublet-M, et puis Φ_a à n et Φ_b à Ξ^c_0, qui en formeraient un autre. Dans ce modèle, le courant $(\overline{\Xi^c_-}\,\Xi^c_0)$ du type V + A est différent du courant $(\overline{p}n)$ qui est du type V — A (³). Ces courants conservent l'étrangeté.

Si Ψ est un doublet-M mais Φ un doublet-M', nous aurons des courants faibles du type $(\overline{\Xi^c_-}\,n)$ et $(\overline{p}\,\Xi^c_0)$, qui ne conservent pas l'étrangeté.

Ainsi, le modèle des doublets-M pourraient bien se généraliser aux baryons et aux mésons aussi (⁴). La différence d'étrangeté des particules ne les empêche pas nécessairement de former des doublets-M ou M' dans l'interaction faible, comme le montre plus haut le cas des nucléons et des hypérons Ξ.

Si l'on prend au sérieux le schéma de généralisation du modèle des doublets-M que nous envisageons plus haut, le champ d'un doublet-M comme Ψ ou Φ ne représente en général pas des particules d'une étrangeté bien définie. Il peut comporter deux étrangetés différentes, et les états propres de la masse propre sont les états propres de l'étrangeté aussi. L'étrangeté S, la symétrie M et la conjugaison particule-antiparticule C ne seraient donc pas des nombres quantiques indépendants. Il pourrait exister un certain lien entre S d'une part et M et C de l'autre. Une explication de l'étrangeté pourrait donc être envisagée dans le modèle des doublets-M.

Si l'on envisageait une généralisation de ce modèle aussi aux interactions fortes, les champs fondamentaux seraient ceux des doublets-M ou M' comme Ψ et Φ. Comme chacun de ces champs comporte en général deux états propres de la masse propre et de l'étrangeté, on pourrait établir de cette sorte de nouvelles propriétés de symétrie et de nouvelles règles de sélection dans les interactions fortes. Cette situation ressemble bien au cas des mésons K neutres. En effet, c'est le champ fondamental K_0-$\overline{K_0}$ qui apparaît directement dans les interactions fortes. Mais dans les interactions faibles de désintégration, ce sont les états propres de CP, K_{01} et K_{02}, que l'on peut appeler un « doublet-CP », qui sont directement observables.

(²) Nous pouvons également définir le courant faible J_λ avec signe moins devant les deux derniers termes dans (60). Nous aurons alors un courant semblable à (65) et à (66) mais avec un changement d'hélicité de chaque opérateur de champ, car les variables à indice 2 remplaceront celles à indice 1 dans (65) et (66).

(³) Explicitement le courant (66) s'écrit dans ce cas

$$J_\lambda = \frac{1}{2}\overline{p}\gamma_\lambda(1+\gamma_5)n + \frac{1}{2}\overline{\Xi^c_-}\gamma_\lambda(1-\gamma_5)\,\Xi^c_0 = \frac{1}{2}\overline{p}\gamma_\lambda(1+\gamma_5)n + \frac{1}{2}\overline{\Xi_0}\gamma_\lambda(1+\gamma_5)\,\Xi_-.$$

Le courant $(\overline{\Xi}_0\,\Xi_-)$, tout comme $(\overline{p}n)$, est du type $V - A$.

(⁴) Le modèle des doublets-M peut se généraliser aux mésons π et K en procédant comme pour sa généralisation aux baryons envisagée plus haut, si l'on prend surtout la formulation en équations linéaires du premier ordre de Kemmer pour les champs mésoniques. Faute de partenaires du point de vue de l'isospin et de l'étrangeté, les π et les K peuvent former respectivement avec eux-mêmes des doublets-M. Pour cela, on met simplement $m_2 = 0$ (ou bien $m_1 = 0$). Dans ce cas, une particule est une superposition de deux états propres de la symétrie M. Nous pourrons bien construire des courants faibles du type (60) aussi, mais alors Ψ_a et Ψ_b, de même que Φ_a et Φ_b, ne sont plus que les deux états propres de la symétrie M d'une même particule. Évidemment on peut également considérer ces deux états propres comme deux particules distinctes qui sont pourtant identiques à tous les points de vue sauf seulement celui de la symétrie M. Ayant une même constante de couplage, les parties V des courants faibles mésoniques ainsi construits formeraient avec les parties V de ceux des baryons un courant V total que conservent les interactions faibles. (*Note ajoutée à la correction des épreuves.*)

11. Conclusion et remarques. — En tenant compte de la symétrie de $+m$ et $-m$ dans le terme de masse, d'une modification possible de l'équation de Dirac nous obtenons un champ M-symétriquement self-couplé. Ce champ comporte deux masses propres et nous permet d'établir un modèle unifié de l'électron et du muon. Le neutrino à quatre composantes est un cas particulier de ce modèle.

L'interaction faible des leptons a un aspect particulièrement simple dans ce modèle, car le courant faible leptonique fondamental, tout comme le courant électrique de l'électron-muon, est du seul type V. Mais les courants faibles des champs composants, $e\mu\nu\omega$, sont tous bien du type V-A. Cependant, les neutrinos ν et ω associés respectivement à e et à μ ont des hélicités opposées, et les interactions faibles, dans ce sens, ne sont pas des interactions universelles. Dans l'hypothèse où ν et ω ont des hélicités opposées, le spectre de l'électron de la désintégration du muon n'est pas en désaccord avec les expériences [8]. D'autres conséquences de cette hypothèse doivent aussi être étudiées, par exemple celles dans la capture de μ^- par les noyaux. La détermination par expérience de l'hélicité du muon dans la désintégration du méson π pourra apporter des informations directes sur les hélicités de ν et ω.

Dans le présent modèle, la non-conservation de la parité de l'interaction faible est une conséquence du principe de la symétrie M, et cela indépendamment des particules participantes. Étant donné que la théorie est entièrement basée sur la symétrie M, cette situation peut être considérée comme un aspect satisfaisant du modèle des doublets-M.

Une généralisation possible a été envisagée de ce modèle aux baryons et aux mésons. Dans le schéma de généralisation, évidemment trop simple, que nous avons proposé au paragraphe 10, les états propres de la masse propre d'un champ de doublet de masse sont aussi les états propres de l'étrangeté.

Dans le modèle des doublets-M, les constantes m_1 et m_2 sont plus significatives que les masses m_e et m_μ elles-mêmes. Dans une étude éventuelle du spectre des masses propres des particules élémentaires, il serait aussi plus significatif de tenir compte directement de m_1 et m_2 au lieu de m_e et m_μ. Aussi serait-il intéressant d'étudier les conséquences possibles du couplage $\psi(m)$-$\psi(-m)$ dans les théories des renormalisations des champs quantifiés.

Note supplémentaire. — Au sujet des règles de sélection impliquées par le principe de la symétrie M, on remarque tout de suite que, d'après les conditions de symétrie M, (26), les éléments de matrice effectifs comme

$$(\bar{u}_e\, \Omega_i\, u_\mu)\, (\bar{u}_e\, \Omega_i\, u_e), \qquad (\bar{u}_e\, \Omega_i\, u_\mu)\, (\bar{u}_N\, \Omega_i\, u_N),$$
$$i = (V, A) \text{ ou } (S, P, T)$$

ne sont pas M-symétriques, de même que

$$(\bar{u}_e\, \gamma_\lambda\, u_\mu)\, A_\lambda,$$

si $A_\lambda \rightarrow A_\lambda$ sous l'inversion M. Ces éléments de matrice ne peuvent donc pas résulter d'une théorie entièrement M-symétrique. Ainsi dans le présent modèle des leptons, les processus leptoniques comme $\mu \rightarrow e + \gamma$, $\mu \rightarrow e + e^+ + e^-$, $\mu + N \rightarrow e + N$, etc... sont interdits, si l'on ne tient pas compte d'autres interactions qui ne seraient pas M-symétriques (interactions fortes par exemple). Cette règle de sélection résulte directement de la différence des propriétés de symétrie de e et de μ vis-à-vis de la symétrie M dans le présent modèle (voir (26)). Selon les conditions de la symétrie M, (26), on peut assigner un nombre quantique $M = +1$ à e et $M = -1$ à μ et de même $M = +1$ à ν et $M = -1$ à ω La règle de sélection engendrée par la symétrie M s'exprimera dans ce cas par la conservation de M. Cette règle de sélection est évidemment différente de la conservation du nombre leptonique L, avec $L = +1$ pour tous les leptons e^-, μ^-, ν, ω et $L = -1$ pour tous les antileptons dans le présent modèle. On doit supposer évidemment que, dans les processus leptoniques, L et M sont tous les deux conservés. Dans la généralisation envisagée au paragraphe 10, on peut également assigner un nombre quantique M aux baryons et aux mésons dans l'interaction faible, ainsi $M = +1$ pour les nucléons p et n, mais $M = -1$ pour les hypérons Ξ_- et Ξ_0.

Nous remercions vivement M. R. Nataf pour d'intéressantes discussions sur les interactions faibles.

Manuscrit reçu le 7 novembre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Schwinger (J.), *Ann. Physics* (E.-U.), 1957, **2**, 407. Goldhaber (M.), *Phys. Rev., Lett.* 1958, **1**, 467. Gell-Mann (M.), *Rev. Mod. Physics*, 1959, **31**, 834.

[2] Feinberg (G.), *Phys. Rev.*, 1958, **110**, 1482. Weinberg (S.) et Feinberg (G.), *Phys. Rev. Lett.*, 1959, **3**, 111, 244.

[3] Feinberg (G.), Kabir (P.) et Weinberg (S.), *Phys. Rev. Lett.*, 1959, **3**, 527. Cabibbo (N.) et Gatto (R.), *Phys. Rev.*, 1959, **116**, 1134. Cabbibo (N.), Gatto (R.) et Zemach (C.), *Nuovo Cimento*, 1960, **16**, 168.

[4] Cabbibo (N.) et Gatto (R.), *Phys. Rev. Lett.*, 1960, **5**, 114.

[5] Tzou (K. H.), *C. R. Acad. Sc.*, 1959, **248**, 375 ; *J. Physique Rad.*, 1959, **20**, 597, 933 ; *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 537.

[6] Tzou (K. H.), *C. R. Acad. Sc.*, 1960, **251**, 2659, 2895.

[7] Tzou (K. H.), *C. R. Acad. Sc.*, 1960, **250**, 668, 995.

[8] Rosen (S. P.), *Phys. Rev. Lett.*, 1960, **4**, 613.

[9] Love (W. A.), Marder (S.), Nadelhaft (I.) et Siegel (R. T.), *Phys. Rev. Lett.*, 1960, **4**, 382.

[10] Lee (T. D.) et Yang (C. N.), *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 1671. Landau (L. D.), *Nuclear Physics*, 1957, **3**, 127. Salam (A.), *Nuovo Cimento*, 1957, **5**, 299.

[11] Sakurai (J. J.), *Nuovo Cimento*, 1958, **7**, 649.

[12] Tzou (K. H.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 579.

DISTRIBUTION ANGULAIRE DE LA RÉACTION $^{6}Li(p, a)^{3}He$ DE 100 A 300 keV

Par N'GUYEN HUU KHANH, L. GOLDMAN et R. BOUCHEZ,
Laboratoire de Physique Nucléaire, Université et C. E. A., Grenoble.

Résumé. — La distribution angulaire des particules ^{3}He de la réaction $^{6}Li(p, \alpha)^{3}He$ a été mesurée à 144, 171, 215 et 247 keV, de 45° à 150° utilisant un spectromètre α à scintillation ICs et un sélecteur 200 canaux. Les points obtenus sont représentés de 60° à 150° par $I(\theta) \simeq 1 + A \cos \theta$, avec $A \simeq 0,25$, montrant une forte prédominance de l'émission des ^{3}He vers l'avant ; en outre, il apparaît une diminution aux plus petits angles. La théorie du noyau composé, utilisant deux niveaux (1,5 MeV, 3/2 +, ondes S) (1,85 MeV, 5/2 —, ondes P) interprète seulement 20 % du coefficient A ; la plus grande partie de l'interaction semble due à un processus de « pick-up » du groupe deuton du ^{6}Li par le proton.

Abstract. — The angular distribution of ^{3}He-particles from the $^{6}Li(p, \alpha)^{3}He$ reaction has been measured below 300 keV. The distribution obtained $I(\theta) \simeq 1 + A \cos \theta$ (with $A \simeq 0.25$) beyond 60° gives preferentially an emission in the forward direction.

The compound nucleus theory with two interfering levels (3/2 + at 1.5 MeV and 5/2 — at 1.85 MeV) does not explain the angular distribution observed ; a direct interaction process (pick-up) seems to take place at such a low proton energy.

L'étude de la réaction $^{6}Li(p, \alpha)^{3}He$ par Marion (1956), pour une énergie des protons de 0,6 à 2,9 MeV, a montré que si l'on pouvait décrire la distribution angulaire par des ondes de protons s ou p jusqu'à environ 2,5 MeV il n'était pas possible de le faire à 2,9 MeV et qu'il fallait supposer soit des ondes de moment angulaire plus élevé soit un processus d'interaction directe. Ayant incidemment observé pour une énergie de 200 keV que les particules ^{3}He étaient surtout émises vers l'avant, nous avons entrepris l'analyse détaillée de la distribution angulaire qui n'était pas connue au-dessous de 300 keV.

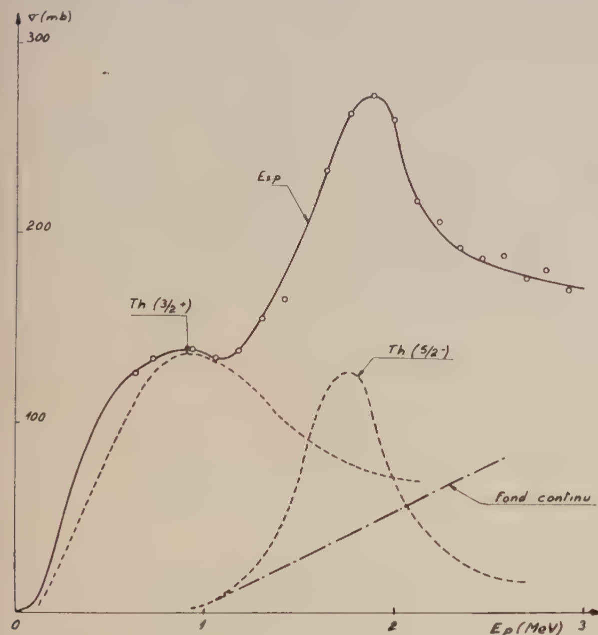


Fig. 1. — La courbe continue est la courbe d'excitation expérimentale de la réaction $^{6}Li(p, \alpha)^{3}He$ (Marion, 1956). Les courbes discontinues ont été obtenues à partir de la formule de Breit et Wigner en utilisant les paramètres du tableau I.

Dans ce domaine d'énergie le seul niveau 3/2 + de 1 MeV (protons s) ne peut expliquer une telle distribution ; ce niveau 3/2 + n'est d'ailleurs pas sûr (Marion, 1956) la forme de la section efficace ne s'accordant pas bien (*fig.* 1) avec une résonance à un niveau. Quant au second niveau 5/2 — de 1,85 MeV (ondes P) il est fort éloigné et une interférence avec le niveau 3/2 + produit un terme en cos θ qui ne suffit pas à interpréter la forme observée pour la distribution angulaire.

Dispositif expérimental. — Le dispositif expérimental a été décrit précédemment (Bouchez, 1960, Goldman, 1960) et comprend essentiellement un accélérateur électrostatique (300 kV, 1 mA), l'énergie du faisceau étant définie par la stabilité 1 % de la génératrice haute tension SAMES.

Les cibles de Li naturel étaient obtenues par évaporation, et introduites dans la chambre à réaction sous forme de LiOH.

Les particules α et ^{3}He furent détectées à l'aide de deux spectromètres (3 % pour les α de 8 MeV du ^{7}Li) à scintillation par ICs. L'un, la voie fixe situé à 75° du faisceau de protons était utilisé comme « moniteur » ; l'autre la voie mobile, donnait à la fois le spectre des particules α et ^{3}He et le spectre des particules α du $^{7}Li(p, 2\alpha)$. Vers l'avant les particules α et ^{3}He ont toujours été bien séparées, mais vers l'arrière ($\varphi > 135°$) les particules α (^{6}Li) parvenaient sur le cristal ICs avec une énergie d'environ 800 keV ($E_p \simeq 200$ keV) étaient partiel-

lement cachées par les protons diffusés. Chaque détecteur avait un angle solide $\Omega/4\pi \simeq 5.10^{-4}$.

Devant les cristaux d'ICs on dispose un écran 200 µg/cm² polystyrène recouvert de 150 µg/cm² aluminium évaporé pour arrêter les protons diffusés.

Trois chaînes électroniques ont été réalisées d'une part la voie fixe pour la détection des α du ^{7}Li utilisée comme « moniteur » de la réaction, et d'autre part la voie mobile à angle variable était dédoublée, une première partie donnant le spectre α et ^{3}He du ^{6}Li, la seconde partie donnant le spectre α du ^{7}Li pour obtenir la distribution angulaire simultanée de la réaction ^{7}Li(p, 2α) utilisée comme test. Les spectres étaient analysés par un sélecteur 200 canaux (seuil 400 keV pour α).

Résultat des mesures. — On a effectué les mesures pour les énergies 144, 171, 215 et 247 keV, pour chaque énergie on a mesuré l'intensité relative des particules ^{3}He pour un angle $\varphi(L)$ variable de 45° à 150°. L'énergie des particules ^{3}He étant plus grande que celle des α le spectre ^{3}He est nettement séparé des α et le bruit de fond négligeable. La hauteur des impulsions des ^{3}He est environ deux fois celle des α à $E_p = 200$ keV et $\varphi = 135°$. La distribution angulaire des ^{3}He est ainsi plus aisée à obtenir, et la précision est beaucoup plus grande que pour celle des α, en outre on peut en déduire la distribution des α.

Le résultat des expériences montre la prédominance vers l'avant dans l'émission des particules ^{3}He, mais l'on constate une nette indication d'une diminution relative aux très petits angles. Il serait utile pour préciser de mesurer la distribution au-dessous de 45° (*fig.* 2).

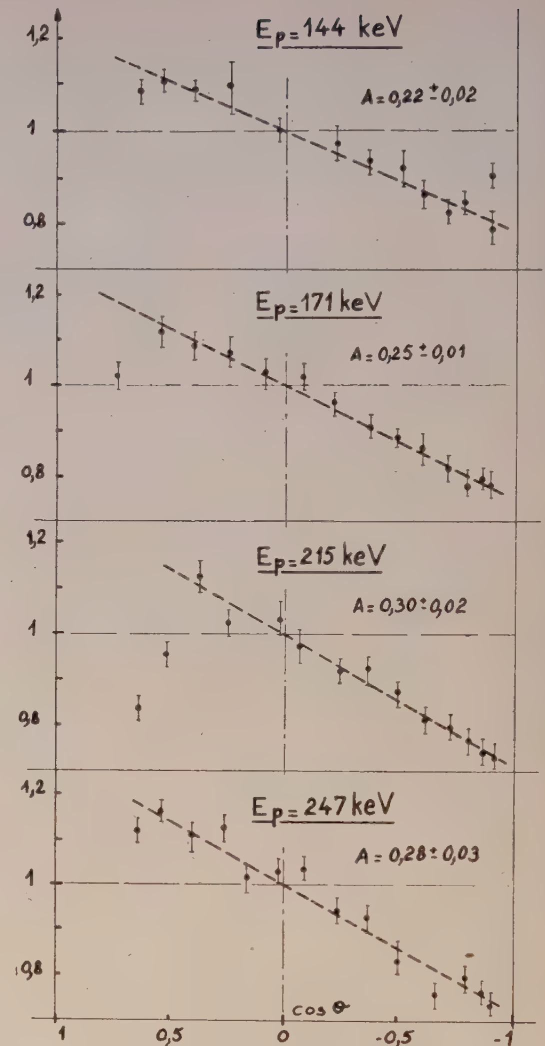


Fig. 2. — Distribution angulaire des particules ^{3}He de la réaction ^{6}Li(p,α)^{3}He dans le centre de masse. Les droites en pointillées correspondent à une loi en $(1 + A \cos \theta)$ en négligeant les points expérimentaux audessous de 60°.

Calcul de la distribution angulaire. — Nous avons calculé les coefficients de la distribution angulaire de la réaction ^{6}Li(p, α)^{3}He à partir du formalisme mathématique de Blatt et Biedenharn. Le calcul de la distribution angulaire nécessite en général des sommations sur les nombres quantiques magnétiques et fait intervenir des séries de Clebsch-Gordon dont la détermination directe est souvent très pénible. Blatt et Biedenharn ont remarqué que toutes les sommations sur les nombres quantiques magnétiques sont essentiellement géométriques et ne dépendent pas du processus particulier de réaction. En introduisant les coefficients $W(ljl'j'\,;\,sk)$ de Racah, ces auteurs montrent que toute distribution angulaire peut se mettre sous la forme

$$\frac{d\sigma}{d\omega} = \frac{\lambda_\alpha^2}{4(2S_a+1)\,(2S_x+1)} \sum_k^\infty C_k P_k(\cos\theta)$$

où λ_α est la longueur d'onde réduite de la voie d'entrée, S_a et S_x les spins de la particule incidente et du noyau cible, $P_k(\cos\theta)$ le polynôme de Legendre d'ordre k et les coefficients C_k sont définis par

$$C_k = \sum_{l_1'} \sum_{l_1} \sum_{l_2'} \sum_{l_2} \sum_{j} \sum_{j'} \sum_{s_1} \sum_{s_2} (-1)^{s_2-s_1} Z(l_1'\,j'\,l_1\,j\,;\,s_1\,k)\,Z(l_2'\,j'\,l_2\,j\,;\,s_2\,k) \times \langle \alpha'\,l_2'\,s_2\,j'|R|\alpha l_1'\,s_1\,j'\rangle^* \langle \alpha'\,l_2\,s_2\,j|R|\alpha l_1\,s_1\,j\rangle.$$

Dans cette expression les coefficients $Z(l'j'lj\,;\,sk)$ sont liés aux coefficients W de Racah par la relation

$$Z(l'j'lj\,;\,sk) = (-1)^{1/2(k-l'+l)}(2l+1)^{1/2}(2l'+1)^{1/2}(2j+1)^{1/2}(2j'+1)^{1/2} \times \langle ll'00|l'lk0\rangle\,W(l'j'lj\,;\,sk).$$

Ces quantités purement géométriques ne dépendent que des moments angulaires totaux j, des moments orbitaux l et des spins s des voies. Tandis que les quantités $< \alpha' l'_2 \, s_2 \, j' | R | \alpha l'_1 \, s_1 \, j' >$ sont des éléments de la matrice de collision dont l'expression, souvent très compliquée, dépend des conditions physiques et de la nature de l'interaction.

Dans la réaction $^6Li(p, \alpha)^3He$ le spin S_a du proton est 1/2 et le niveau fondamental du noyau cible a pour spin $S_x = 1$, le spin de la voie d'entrée peut donc prendre deux valeurs $S_1 = 1/2$ ou 3/2. Cependant, seule la valeur 3/2 de S_1 intervient dans cette réaction pour former avec les protons s et p de moment orbital $l_1 = 0$ et 1, les niveaux 3/2 + et 5/2 – du ^7Be qui correspondent aux niveaux miroirs de 7,7 et de 6,5 MeV du ^7Li.

Comme la « voie de sortie » est composée d'une particule α de spin 0 et d'un noyau d'^3He de spin 1/2, le spin S_2 de cette voie est 1/2 et le moment orbital l_2 doit prendre les valeurs 2, 3 etc... Les ondes d'ordre supérieur des protons incidents pénètrent de plus en plus difficilement dans le noyau cible pour provoquer la réaction, aussi ne considérons-nous ici que les valeurs $l_2 = 2$ et 3.

Nous avons déterminé les valeurs des coefficients $Z(l'j'lj\,;\,sk)$ qui interviennent dans cette réaction à partir des tables de Sharp, Kennedy et Hoyles et par un calcul direct. Compte tenu des hypothèses précédentes, l'expression de la distribution angulaire de cette réaction en fonction des éléments de la matrice de collision s'écrit :

$$\frac{d\sigma}{d\omega} = \frac{\lambda_\alpha^2}{4(2S_a+1)(2S_x+1)}$$

$$\Big\{ 4 < \alpha' \, 2 \, \tfrac{1}{2} \, \tfrac{3}{2} | R | \alpha \, 0 \, \tfrac{3}{2} \, \tfrac{3}{2} >^* < \alpha' \, \tfrac{1}{2} \, \tfrac{1}{2} \, \tfrac{3}{2} | R | \alpha \, 0 \, \tfrac{3}{2} \, \tfrac{3}{2} >$$

$$+ \frac{18}{5} < \alpha' \, \tfrac{1}{2} \, \tfrac{5}{2} | R | \alpha \, 1 \, \tfrac{3}{2} \, \tfrac{5}{2} >^* < \alpha' \, 3 \, \tfrac{1}{2} \, \tfrac{5}{2} | R | \alpha \, 1 \, \tfrac{3}{2} \, \tfrac{5}{2} >$$

$$+ 12 \sqrt{\frac{6}{5}} \, R'_e \, [< \alpha' \, 2 \, \tfrac{1}{2} \, \tfrac{3}{2} | R | \alpha \, 0 \, \tfrac{3}{2} \, \tfrac{3}{2} >^*$$

$$< \alpha' \, 3 \, \tfrac{1}{2} \, \tfrac{5}{2} | R | \alpha \, 1 \, \tfrac{3}{2} \, \tfrac{5}{2} >] \cos \theta$$

$$+ \frac{36}{5} < \alpha' \, 3 \, \tfrac{1}{2} \, \tfrac{5}{2} | R | \alpha \, 1 \, \tfrac{3}{2} \, \tfrac{5}{2} >^*$$

$$< \alpha \, 1 \, \tfrac{3}{2} \, \tfrac{5}{2} | R | \alpha \, 1 \, \tfrac{3}{2} \, \tfrac{5}{2} > \cos^2 \theta \Big\}$$

ou encore :

$$\frac{d\sigma}{d\omega} = \left(4A + \frac{18}{5} C\right) + 12 \sqrt{\frac{6}{5}} \, B \cos \theta + \frac{36}{5} C \cos^2 \theta$$

avec :

$$A = \frac{\lambda_\alpha^2}{4(2S_a+1)(2S_x+1)} < \alpha' \, 2 \, \tfrac{1}{2} \, \tfrac{3}{2} | R | \alpha \, 0 \, \tfrac{3}{2} \, \tfrac{3}{2} >^* < \alpha' \, 2 \, \tfrac{1}{2} \, \tfrac{3}{2} | R | \alpha \, 0 \, \tfrac{3}{2} \, \tfrac{3}{2} >$$

$$B = \frac{\lambda_\alpha^2}{4(2S_a+1)(2S_x+1)} R'_e [< \alpha' \, 2 \, \tfrac{1}{2} \, \tfrac{3}{2} | R | \alpha \, 0 \, \tfrac{3}{2} \, \tfrac{3}{2} >^* < \alpha' \, 3 \, \tfrac{1}{2} \, \tfrac{5}{2} | R | \alpha \, 1 \, \tfrac{3}{2} \, \tfrac{5}{2} >]$$

et

$$C = \frac{\lambda_\alpha^2}{4(2S_a+1)(2S_x+1)} < \alpha' \, 3 \, \tfrac{1}{2} \, \tfrac{5}{2} | R | \alpha \, 1 \, \tfrac{3}{2} \, \tfrac{5}{2} >^* < \alpha' \, 3 \, \tfrac{3}{2} \, \tfrac{5}{2} | R | \alpha \, 1 \, \tfrac{3}{2} \, \tfrac{5}{2} >.$$

Nous avons explicité ces éléments de matrice en utilisant la formule de Breit et Wigner :

$$< \alpha' l' s' j | R | \alpha l s j > = e^{i(\xi_{\alpha l} + \xi_{\alpha' l'})} \sum_\lambda \frac{i G_\lambda^{(\alpha l s)} \, G_\lambda^{(\alpha' l' s')}}{(\varepsilon - \varepsilon_\lambda) + i \Gamma_{\lambda/2}} \delta j j_\lambda$$

où les quantités $G(^{(\alpha ls)}_\lambda)$ sont définies à partir des largeurs partielles $\Gamma(^{(\alpha ls)}_\lambda)$ par la relation :

$$[G_\lambda^{(\alpha ls)}]^2 = \Gamma_\lambda^{(\alpha ls)}$$

et les phases $\xi_{\alpha l}$ sont telles que

$$e^{2i\xi_{\alpha l}} = e^{2i\sigma_{\alpha l}} \frac{G_{\alpha l} - iF_{\alpha l}}{G_{\alpha l} + iF_{\alpha l}}$$

G_l et F désignant les fonctions coulombiennes.

Les caractéristiques des deux niveaux de résonance ont été déterminées à l'aide des courbes d'excitation expérimentales et sont réunies dans le tableau I.

TABLEAU I

E_λ (MeV)	$j_\lambda \, \pi_\lambda$	Γ_λ (keV)	Γ_p (keV)	Γ_α (keV)
1,5	3/2 +	2 570	2 410	160
1,85	5/2 —	500	465	35

Notons que nous avons « déplacé » le niveau à basse énergie pour obtenir un meilleur accord avec la courbe expérimentale.

Comparaison avec l'expérience. — Dans la bande d'énergie comprise entre 0,6 et 2 MeV, les courbes de distribution angulaire déduites de nos calculs s'accordent bien avec les courbes expérimentales et théoriques de Marion, Weber et Mozer (*fig.* 3, 4). Mais pour les énergies plus faibles, nos valeurs théoriques sont nettement inférieures à celles obtenues par L. Goldman (tableau II).

TABLEAU II

E (keV)	A (exp.)	A (théo.)
144	0,22 ± 0,02	0,04
171	0,25 ± 0,01	0,05
215	0,30 ± 0,02	0,06
247	0,28 ± 0,03	0,07

Le coefficient A étant défini par la relation :

$$\frac{d\sigma}{d\omega}(\theta) = \frac{d\sigma}{d\omega}(\pi/2)\,[1 + A \cos + \ldots].$$

Nous voyons que les valeurs calculées du coefficient A sont seulement d'environ 25 % des valeurs expérimentales.

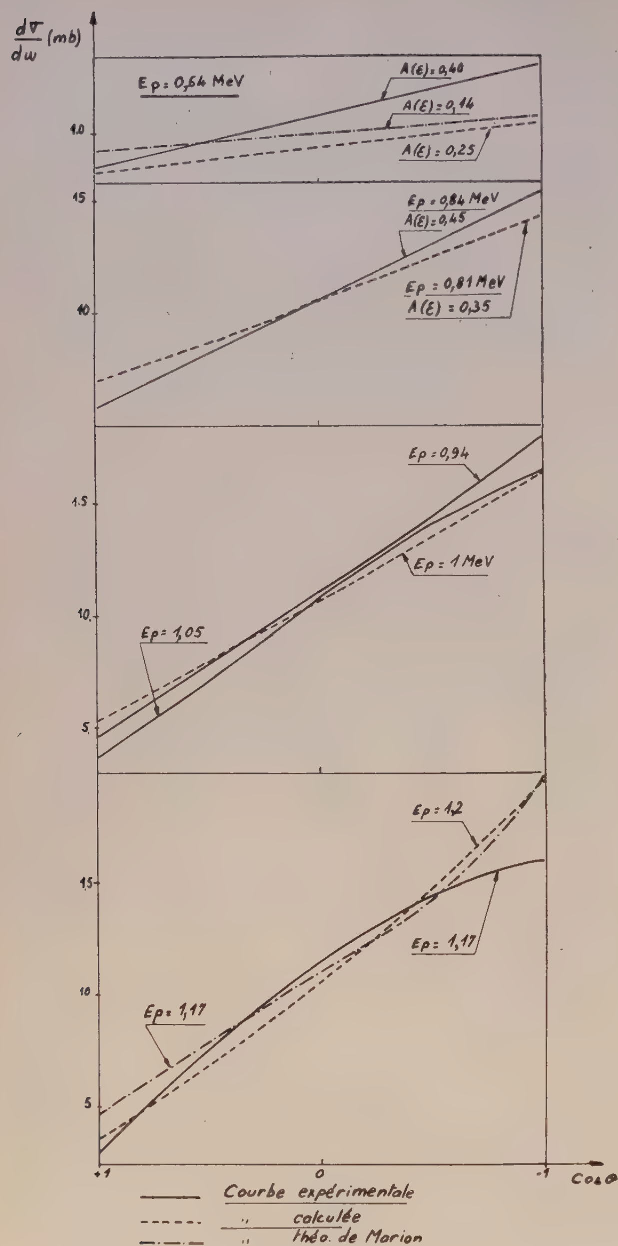


Fig. 3. — Courbes de distribution angulaire : $^{6}Li(p, \alpha)^{3}He$.

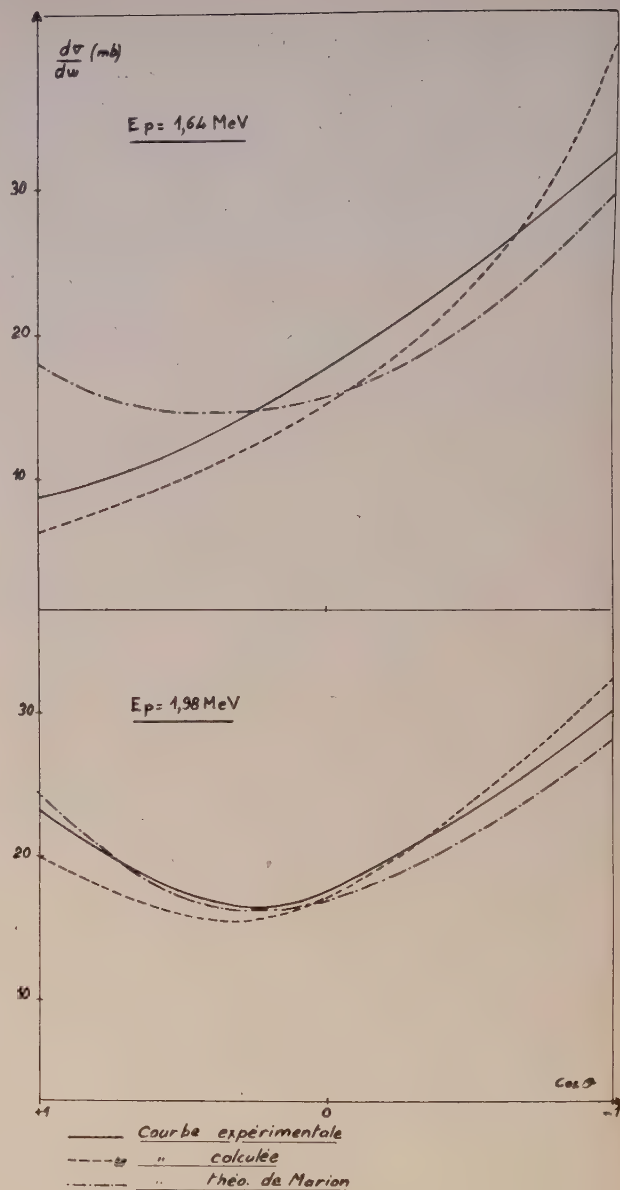


Fig. 4. — Courbes de distribution angulaire : $^{6}Li(p, \alpha)^{3}He$.

L'interprétation théorique de la distribution angulaire à l'aide de la théorie du noyau composé avec les deux niveaux 3/2 + et 5/2 – ne peut donc pas expliquer les résultats expérimentaux, ni pour les très faibles énergies au-dessous de 300 keV, ni pour les énergies au delà de 2,5 MeV (Marion, 1956). Il semble qu'un processus d'interaction directe a eu lieu dans cette réaction même pour les faibles énergies.

De nouvelles expériences seront nécessaires pour étudier la zone d'énergie comprise entre 300 et 600 keV et il sera souhaitable qu'une étude théorique sur la base de la théorie de l'interaction directe soit entreprise pour éclaircir le problème.

Manuscrit reçu le 30 janvier 1961.

BIBLIOGRAPHIE

Blatt (J. M.) et Biedenharn (L. C.), *Rev. Mod. Physics*, 1952, **24**, 258.

[2] Breit (G.), Handbuch der Physik, 1959, XLI/1.

Goldman (L.), Thèse 3e cycle, Grenoble, 1960.

Johnson, Willard et Bair, *Phys. Rev.*, 1954, **96**, 985.

Marion (J. B.), Weber (G.) et Mozer (F. S.), *Phys. Rev.*, 1956, **104**, 1402.

CHALEUR. ÉQUATION BALISTIQUE DE LA CHALEUR SUIVANT LES LIGNES DE FLUX DANS LE CAS DE LIGNES DE FLUX STABLES. VERS UNE ÉQUATION IMPULSIONNELLE UNIVERSELLE

Par F. CAMIA

Institut de Microcalorimétrie et de Thermogénèse du C. N. R. S. de Marseille.

Résumé. — On considère l'écoulement de la chaleur quand il se fait par des tubes de flux de forme quelconque géométriquement stable (bien que la quantité de chaleur qui passe et donc la température puisse être variable). On suppose la conductivité et la capacité thermique constantes. Dans ce cas la solution générale de l'équation de la chaleur pour un tube déterminé, peut toujours s'exprimer par une *somme* de produit d'une fonction U_p de l'abscisse (longueur de tube parcourue) par une exponentielle du temps. On donne l'équation universelle pour déterminer les U_p. C'est une équation de la famille Sturm-Liouville qui comprend comme variable indépendante l'abscisse, comme fonctions auxiliaires la section du tube de flux (fonction arbitraire de l'abscisse) et sa dérivée, et comme paramètre la valeur propre de chaque U_p fixée par les conditions aux limites. Les coefficients des termes de la somme sont classiques. L'exponentielle du temps est entièrement déterminée par les valeurs propres de U_p.

On peut alors calculer les effets d'une impulsion thermique localisée dans l'espace et dans le temps. Par intégration on arrive à une équation universelle de la chaleur pour les cas considérés. Les équations classiques (Série de Fourier, de Bessel, etc...) n'en sont que des cas particuliers. On passe à un hyperspace et à un espace courbe à n dimensions par des lois de récurrence simples.

Quant à l'impulsion élémentaire elle-même, elle s'exprime par une somme de fonctions Up dont les coefficients ne nécessitent pas d'intégration.

En dehors de l'équation de la chaleur, l'intérêt de ces solutions réside en ce qu'elle permet de résoudre tous les problèmes analogues de la diffusion et qu'elle peut être utilisée dans les équations d'onde de la mécanique ondulatoire, qui sont des fonctions U.

Abstract. — We consider the flow of heat when it passes through flux tubes of any geometrically stable form (even the quantity of heat though flux may be variable, and consequently the temperature). We suppose besides that conductivity and thermal capacity are invariable. In this case, the general solution of the heat equation for one determined tube can always be expressed by a sum of products of a " U_p " function of the abscissa (run over length of the tube) by an exponential of the time. The universal equation is given in order to determine the " U_p ". It is an equation of the Sturm-Liouville kind which comprises as independant variable the abscissa ; as auxiliary functions the section of the flux tube (arbitrary function of the abscissa) and its derivative ; and as parameter the proper value of each " U_p " fixed by the boundary conditions. The coefficients of the terms of the sum are classical. The exponential of the time is entirely determined by the proper values of " U_p ".

It is then possible to calculate the effects of a thermal pulse localised in space and in time. By integrating, we reach an universal equation of the heat for each of the cases surveyed. The classical equations (Fourier, Bessel... and so on) are only particular cases. We go to an hyperspace, or to a curved space of n dimensions, by means of simple recurrence laws.

The elementary pulse itself is expressed by the sum of " U_p " functions whose coefficients do not necessitate any integration.

Apart from the problem of heat, the interest of this method resides in the fact that it allows the solution of all similar problems of diffusion and that it can be used in all the equations of wave mechanics which are " U " functions.

Nos travaux précédents [1] sur l'équation balistique de la chaleur nous ont montré une telle unité dans les procédés de résolution que nous avons recherché si les problèmes classiques n'étaient pas des cas particuliers d'une solution plus générale qui les comprend et les dépasse. Nous avons pu mettre en évidence cette solution générale. Comme exemple d'application on traite le problème d'un espace à n dimensions et celui d'un espace courbe.

1. Recherche de l'équation différentielle fondamentale du refroidissement. — Nous considérerons l'écoulement de la chaleur dans un solide isotrope et homogène suivant un tube de flux géométriquement déterminé. Entre les éléments successifs du tube de flux nous appliquons la loi de Fourier :

$$\mathrm{d}q = k.s.\frac{\partial\theta}{\partial x}\partial t \qquad (1)$$

où $\mathrm{d}q$ est la quantité de chaleur qui s'écoule en un temps $\mathrm{d}t$ pour un gradient de température $\partial\theta/\partial x$; k est le coefficient de conductibilité thermique du milieu et s la section droite du tube de flux. Les abscisses x sont mesurées sur le tube de flux.

Dans ces conditions, l'augmentation de température par unité de temps, pour un élément déterminé, est :

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = \frac{1}{\gamma s} \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}x} \left(\frac{\partial q}{\partial t}\right) = \frac{1}{\gamma s} \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}x} \left(k . s . \frac{\partial \theta}{\partial x}\right). \quad (2)$$

Nous supposons ici que k est un invariant, de même que la chaleur spécifique γ. Mais la section s du tube de flux est fonction de x. Dans ces conditions, en posant $k/\gamma = h$, l'équation (2) devient :

$$s \frac{\partial \theta}{\partial t} = h \left(s \frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2} + \frac{\mathrm{d}s}{\partial x} \frac{\partial \theta}{\partial x}\right). \quad (3)$$

Or, nous savons que, dans le cas d'un flux à lignes stables [2], on peut *toujours* écrire θ sous la forme :

$$\theta = \sum_{p=0}^{\infty} \alpha_p \, f_p(x) \ \mathrm{e}^{-\omega^2{}_p ht}. \quad (4)$$

En transposant cette valeur de θ dans l'équation (3) nous trouvons, pour déterminer les fonctions f :

$$\omega_p^2 f_p(x) + \frac{s'}{s} f'_p(x) + f''_p(x) = 0. \quad (5)$$

Cette équation peut se mettre aussi sous une des deux formes suivantes :

$$\omega_p^2 f_p(x) + \frac{\mathrm{d}\,(\log s)}{\mathrm{d}x} f'_p(x) + f''_p(x) = 0 \quad (6)$$

$$s\ \omega_p^2 f_p + \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}x} (s f'_p) = 0. \quad (7)$$

Pour résoudre le problème de la chaleur, il faut rechercher la solution générale de (5) dont f_p est une solution particulière. Parmi l'infinité de solutions particulières offerte par la solution générale, il faut choisir celles qui sont compatibles avec les conditions aux limites, d'où détermination des ω. Enfin, les coefficients α sont fixés par la distribution initiale de la chaleur dans le tube de flux ; soit, en faisant $t = 0$ dans (4) :

$$\theta_{(t=0)} = \sum_{p=0}^{\infty} \alpha_p \, f_p(x). \quad (8)$$

Désormais, nous appelons $U(x)$ la solution générale de l'équation (5) qui devient :

$$\omega^2 U + \frac{s'}{s} U' + U'' = 0. \quad (9)$$

La fonction U, solution de (9), est aussi fonction de ω, ce que nous exprimons par $U(\omega, x)$; tandis que s est toujours fonction de la seule variable x.

Pour simplifier l'écriture, nous écrirons U pour $U(\omega, x)$; de même $U\omega_p$ ou U_p pour $U(\omega_p, x)$ et Ua pour $U(\omega, a)$.

2. Simplification de l'équation fondamentale par changement de variable. — Si l'on divise le tube de flux non en éléments de même longueur $\mathrm{d}x$ mais en éléments de même capacité thermique (éléments équicapacitaires) de longueur $\mathrm{d}z$, on est conduit à employer, au lieu de x, la variable z déterminée par :

$$\mathrm{d}z / \mathrm{d}x = 1 / s. \quad (10)$$

Alors, U devient $u(z)$, $s(x)$ devient $\sigma(z)$, et l'équation (9) devient :

$$u'' / u = - \omega^2 \sigma^2 \quad (11)$$

les dérivations étant faites par rapport à z. On trouve donc une équation formellement identique à celles de la mécanique ondulatoire.

3. Propriétés fondamentales des fonctions U. — Les fonctions définies par (11) ou par (9) sont des fonctions du type Sturm-Liouville dont les ω sont les valeurs propres. L'intégration repose sur les propriétés suivantes, bien connues :

a) Si les ω de (9) sont les racines soit de $U(\omega, a) = 0$ soit de $U'(\omega, a) = 0$, et de même pour $x = b$, on a

$$\int_a^b s U_p \, U_q \, \mathrm{d}x = 0. \quad (12)$$

b) En faisant tendre ω_q vers ω_p on trouve

$$\int_a^b s . U^2 . \mathrm{d}x = [s(b)\ Z(b) - s(a)\ Z(a)] / 2\,\omega \quad (13)$$

où

$$Z(x) = (\partial U / \partial x) . (\partial U / \partial \omega) - U(\partial^2 U / \partial x . \partial \omega). \quad (14)$$

c) La solution générale de l'équation (9) comporte deux fonctions indépendantes V_1 et V_2 (solutions fondamentales) et deux constantes arbitraires A et B

$$U = AV_1 + BV_2. \quad (15)$$

Les deux constantes sont, dans les problèmes concrets, liées l'une à l'autre par les conditions aux limites, ce qui détermine parfaitement la forme de U.

4. Développement, en série de fonctions U, d'une fonction physique quelconque $f(x)$; possibilité. — Par « fonction physique », nous entendons une fonction telle qu'un physicien est amené à la considérer pour exprimer une grandeur physique variable. Une telle fonction n'a jamais de valeur infinie ni de dérivée infiniment grande quand il s'agit d'états *réels* de la matière, ce qu'expriment les conditions de Dirichlet.

De la définition des fonctions U et de leur existence à partir de la relation (8) pour la distribution des températures à un instant donné, distribution qui peut être *quelconque*, il résulte comme conséquence que *toute fonction physique*, comme la température θ, peut être représentée par une série de

fonctions U. Comme il est évident que l'on peut concevoir une distribution $\theta = f(x)$ quelconque dans une tige solide dont les sections varient de façon quelconque, on démontre ainsi le théorème suivant :

Théorème I. — Toute fonction physique d'une variable peut être représentée équivalemment par une série de fonctions U. N'importe quelle espèce de fonctions U peut être employée pour représenter par une série la fonction considérée. Puisque les fonctions U représentent une fonction physique, leur somme est convergente dans tout l'intervalle considéré.

5. **Calcul des coefficients.** — Il se fait de façon classique [3] à partir des équations (12) et (13) car toute fonction physique $f(x)$ comporte en fait des zéros, des maxima ou des minima (ne seraient-ce que les valeurs aux limites considérées comme telles).

Ainsi, pour les problèmes relatifs à la chaleur, on peut déterminer dans un tube de flux des points thermostatiques où la température peut être considérée comme nulle constamment, ou des aires isolées (flux zéro) où $\partial\theta/\partial x$ est constamment nul (si la température d'un point thermostatique n'est pas nulle, on peut toujours ramener le problème à celui du point à température constante nulle).

Ces points particuliers sont généralement les limites a et b du tube de flux considéré.

Dans ces conditions, les ω sont les racines de *l'une* des 2 équations

$$U(\omega, a) = 0 \quad (16) \qquad U'(\omega, a) = 0 \quad (17)$$

et de même pour b

$$U(\omega, b) = 0 \quad (18) \qquad U'(\omega, b) = 0. \quad (19)$$

On pourra donc écrire

$$\theta(t = 0) = f(x) = \sum_{p=0}^{\infty} \alpha_p \, U_p(x). \qquad (20)$$

L'équation (20) représente une suite *discrète* de fonctions U, les indices étant choisis entiers et croissant avec la valeur des ω.

Le calcul des coefficients α_p se fait de manière très classique à partir de (12) et (13) en faisant $\int_a^b s . f(x) \, U_p \, dx$ ce qui donne :

$$\alpha_p = \frac{2 \, \omega_p \int_a^b s . f(x) . U_p \, dx}{s(b) \, Z_p(b) - s(a) \, Z_p(a)}. \qquad (21)$$

On sait que la valeur de α_p ainsi déterminée est *unique*. D'où :

Théorème II. — Lorsque *l'espèce* de fonction U destinée à représenter la fonction $f(x)$ est choisie (*d'après la forme de s*), les coefficients de $f(x)$ ne peuvent être déterminés que d'une manière.

Il n'y a donc qu'*une* série possible pour représenter concrètement la fonction température *dans un tube de flux déterminé.*

Il sera plus simple d'écrire l'équation (21) sous la forme

$$\alpha_p = 2 \, \omega_p \, F_p / \Delta(s Z_p). \qquad (22)$$

6. **Propriétés des fonctions U.** — Les fonctions que nous avons définies s'annulent, elles ou leurs dérivées, au moins en deux points de l'intervalle considéré. C'est la condition de Sturm-Liouville, un peu restreinte.

Dans ce cas, nous savons que, d'après la forme de (11), comme σ^2 est toujours positif les valeurs propres ω^2 sont en nombre infini toutes distinctes et toutes positives, ce qui exclut toute valeur imaginaire pour ω.

Nous avons vu que la solution générale U relative à un ω, est une combinaison linéaire de deux solutions particulières, V_1 et V_2, avec deux coefficients indépendants A et B. Les deux fonctions $V_1(\omega, x)$ et $V_2(\omega, x)$ sont *oscillatoires*, les zéros de l'une s'intercalant dans les zéros de l'autre.

7. **Équation balistique de la chaleur.** — On suppose à l'instant zéro une « impulsion » en un point quelconque du tube de flux, c'est-à-dire un dégagement de chaleur (négatif pour le cas d'une absorption) dans un élément tubulaire de longueur dl infiniment petite.

Ce dégagement de chaleur est dû à une *source « instantanée »* d'abscisse l de puissance $W(l)$ fonctionnant pendant le temps infiniment petit du. Il en résulte une élévation locale de tempéraure dθ qui vaut $W . du / \gamma s$.

Les états thermiques dûs à des causes différentes peuvent être considérés comme indépendants (ce qui résulte de la linéarité des équations de la chaleur). On doit donc, pour étudier les effets *seuls* de cette impulsion, considérer *tout le reste* du conducteur primitivement à 0°. On peut alors facilement calculer la fonction F_p de l'équation (22).

En effet.

$$F_p = \int_a^b s . f(x) . U_p . dx = \int_l^{l+dl} s . \frac{W . du}{\gamma . s} . U_p . dx$$

(du est ici une constante pour l'intégration) or

$$\int_l^{l+dl} \varphi(x) \, dx = \varphi(l) . dl$$

d'où

$$F_p = (W / \gamma) . U_p(l) . dl . du \qquad (23)$$

$$\alpha_p = \frac{2 \, \omega_p}{\gamma . \Delta(s Z_p)} \, W . U_p(l) . dl . du. \qquad (24)$$

L'équation donnant les états de température au temps zéro dûs à l'impulsion à l'instant zéro, c'est-à-dire la description de la fonction impulsion elle-même, s'exprime d'après (8), (22) et (23)

$$d\theta_{(t=0)} = \frac{2.W.du.dl}{\gamma} \sum_{p=0}^{\infty} \frac{\omega_p . U_p(l) . U_p(x)}{\Delta(sZ_p)}. \quad (25)$$

Quand à la température résultante au temps t elle vaut d'après (4)

$$d\theta_{(l)} = \frac{2W\, du\, dl}{\gamma} \sum_{p=0}^{\infty} \frac{\omega_p\, U_p(l)\, U_p(x)}{\Delta(sZ_p)} e^{-\omega^2{}_p ht}. \quad (26)$$

8. **Équation générale de la chaleur.** — Si, au lieu d'une unique impulsion entre l et $l + dl$, on considère toutes les impulsions thermiques données au temps zéro dans tout le tube de flux, en appelant $W(l)\, du$ la puissance mise en jeu à l'abscisse l, la température résultante en un point x d'observation s'obtient par intégration de (26), pour t quelconque

$$d\theta = \frac{2du}{\gamma} \sum_{p=0}^{\infty} \left\{ \frac{\omega_p\, U_p(x)}{\Delta(sZ_p)} \int_a^b {}_pU(l)\,)Wl)\, dl \right\} e^{-\omega^2{}_p ht}. \quad (27)$$

Quand les impulsions, au lieu d'être produites au temps zéro sont produites au temps u, le temps qui s'écoule entre le temps d'observation et le temps de production est $t - u$. L'équation (27) devient

$$d\theta = \frac{2du}{\gamma} \sum_{p=0}^{\infty} \left\{ \frac{\omega_p\, U_p(x)}{\Delta(sZ_p)} \int_a^b U_p(l)\, W(l)\, dl \right\} e^{-\omega^2{}_p h(t-u)}. \quad (28)$$

Enfin, en considérant toutes les impulsions produites dans le temps jusqu'à t, on obtient *l'équation générale de la chaleur pour les tubes stables de flux* :

$$\theta = \frac{2}{\gamma} \sum_{p=0}^{\infty} \left\{ \frac{\omega_p\, U_p(x)}{\Delta(sZ_p)} \int_{-\infty}^{t} \int_{l=a}^{b} U_p(l)\, W(l, u)\, dl . e^{-\omega^2{}_p h(t-u)}\, du \right\} \quad (29)$$

qui peut s'écrire

$$\theta = \frac{2}{\gamma} \sum_{p=0}^{\infty} \left\{ \frac{\omega_p\, U_p(x)\, e^{-\omega^2{}_p ht}}{\Delta(sZ_p)} \int_{-\infty}^{t} \int_a^b U_p(l)\, W(l, u)\, dl . e^{+\omega^2{}_p hu}\, du \right\}. \quad (30)$$

En pratique, lorsqu'il y a écoulement de chaleur les effets des impulsions très anciennes deviennent minimes. Il suffit alors d'intégrer (30) à partir du temps zéro, si le temps t est suffisamment grand.

9. **Expression du régime permanent.** — Le régime permanent s'obtient en faisant W indépendant du temps u (cependant W peut être fonction de l). L'expression (30) devient indépendante du temps

$$0 = \frac{2}{\gamma h} \sum_{p=0}^{\infty} \frac{\omega_p \int_a^b U_p(l)\, W\, dl}{\Delta(sZ_p)} U_p(x). \quad (31)$$

Généralement l'expression de la température en régime permanent peut s'obtenir plus simplement. Mais même alors il est intéressant de constater la concordance des résultats obtenus par les deux méthodes.

10. **Les fonctions sin (x), $J_0(x)$ et sin$(x)/x$, ne sont que des cas particuliers des fonctions U.** — Les fonctions sin (ωx) ont été introduites par Fourier. Grâce aux intégrales de Lommel on a pu obtenir des développements en série de J_0 et N_0 [4]. Récemment encore, la recherche de l'équation balistique dans la sphère nous a conduit [5] à utiliser des séries en sin $(\omega x)/x$. Tous ces développements ne sont que des cas particuliers de développements en séries U.

On peut s'en rendre compte facilement :

a) Flux a lignes droites parallèles (problème du « mur »). — Dans ce cas, la section du tube de flux est constante :

$$s = s_0 ; \quad s' = 0 \quad (32)$$

l'équation (9) devient :

$$\omega^2 U + U'' = 0 \quad (33)$$

d'où

$$U = A_1 \sin(\omega x) + A_2 \cos(\omega x). \quad (34)$$

Les formules (21) et suivantes nous donnent les coefficients des séries de Fourier.

b) Flux a lignes droites, a partir d'un point, dans le plan (problème dit « cylindrique »). — Dans ce cas, b étant une constante :

$$s = b.x ; \quad s' = b \quad (35)$$

l'équation (9) devient :

$$\omega^2 U + (1/x)\, U' + U'' = 0 \quad (36)$$

d'où

$$U = B_1 J_0(\omega x) + B_2 N_0(\omega x) \quad (37)$$

les formules (21) et suivantes donnent les coefficients des séries des fonctions de Bessel.

c) Flux a lignes droites, a partir d'un point, dans l'espace (problème dit « sphérique »). — On a :

$$s = b.x^2 ; \quad s' = 2b.x \quad (38)$$

l'équation (9) devient :

$$\omega^2 U + (2/x)\, U' + U'' = 0 \quad (39)$$

d'où la solution :

$$U = C_1 \frac{\sin(\omega x)}{x} + C_2 \frac{\cos(\omega x)}{x}. \quad (40)$$

Les formules (21) et suivantes donnent les coefficients des développements en $\sin(\omega x)/x$.

11. Passage à *n* dimensions dans un hyper-espace sans courbure. — Les formules précédentes nous donnent la solution des problèmes suivants :

— Diffusion dans un milieu linéaire, à *une dimension* (diffusion dans un fil infiniment mince de section infiniment petite, constante).

— Diffusion dans un plan à partir d'un point, c'est-à-dire dans un milieu à *deux dimensions*, sans courbure.

— Diffusion, à allure sphérique, dans un solide homogène, milieu à *trois dimensions*, les lignes de flux étant des droites.

Les équations (33), (36) et (39) nous montrent la loi de récurrence. Pour un solide à n dimensions et quand les lignes de flux sont des droites — ou des hyperdroites — l'équation différentielle fondamentale est :

$$\omega^2 U + \frac{n-1}{x} U' + U'' = 0. \quad (41)$$

Les solutions de (41) *se déduisent de la fonction sinus pour n impair et des fonctions de Bessel pour n pair.* En effet, soit $U_{(p)}$ la solution de (41) pour $n = p + 1$. On peut vérifier la relation générale de récurrence :

$$U_{(p+2)} = -\frac{1}{x}\frac{\mathrm{d}U_{(p)}}{\mathrm{d}x} \quad (42)$$

que l'on peut écrire de façon plus simple :

$$x . U_{(p+2)} + U'_{(p)} = 0 \quad (43)$$

ce qui permet d'obtenir (les A, A', A'', B, B', B'' étant des constantes *quelconques*) :

$$\left\{\begin{array}{l} U_{(0)} = A_1 \sin(\omega x) + B_1 \cos(\omega x) \\ U_{(2)} = A'_1 \cos(\omega x)/x + B'_1 \sin(\omega x)/x \\ \ldots\ldots\ldots\ldots\ldots\ldots \text{ etc.} \quad (44) \\ U_{(1)} = A_2 J_0(\omega x) + B_2 N_0(\omega x) \\ U_{(3)} = A'_2 J_1(\omega x)/x + B'_2 N_1(\omega x)/x. \\ \ldots\ldots\ldots\ldots\ldots\ldots \text{ etc.} \end{array}\right.$$

Les séries obtenues sont de *plus en plus convergentes, à* mesure que n croît, pour les grandes valeurs de x.

L'équation (43) permet même d'obtenir $U_{(p)}$ connaissant $U_{(p+2)}$. Quoiqu'on ne voie pas à quoi cela peut répondre dans la réalité physique (peut-être à un Univers complémentaire du nôtre ?) on peut *formellement* traiter de la diffusion dans un espace à dimension zéro ou à nombre négatif de dimensions. Ainsi :

$$\left\{\begin{array}{l} U_{(-1)} = A''_2\, x J_1(\omega x) + B''_2\, x N_1(\omega x) \\ U_{(-2)} = A''_1 (\sin(\omega x) - \omega x \cos(\omega x)) \\ \qquad + B''_1 (\cos(\omega x) + \omega x \sin(\omega x)) \quad (45) \\ \ldots\ldots\ldots\ldots\ldots\ldots \text{ etc.} \end{array}\right.$$

Les séries obtenues sont de *plus en plus instables* par rapport à x.

En combinant (41) et (43) on obtient d'autres formules récurrentielles, analogues à celles connues pour les fonctions J. Ainsi :

$$\omega^2 U_{(m)} - (m+1) U_{(m+2)} - x^2 U_{(m+4)} = 0. \quad (46)$$

12. Équations de la diffusion sur une surface sphérique. — Les équations de U nous permettent de traiter le cas de la diffusion sur une surface sphérique infiniment mince, d'épaisseur constante. Si R est le rayon de la sphère (rayon de courbure) et x la longueur d'arc séparant un point de cette surface du centre d'irradiation (pôle de diffusion), la section d'un tube de flux est alors proportionnelle à $\sin(x/R)$. Il en résulte que l'équation différentielle fondamentale (9) devient :

$$\omega^2 U + \frac{\cos(x/R)}{R \sin(x/R)} U' + U'' = 0 \quad (47)$$

ou

$$\omega^2 RU \sin(x/R) + U' \cos(x/R) + RU'' \sin(x/R) = 0. \quad (48)$$

La fonction U ainsi définie peut être considérée comme la combinaison linéaire de deux fonctions V_1 et V_2 l'une paire et l'autre impaire, puisque les dérivées d'ordre pair (0 ; et 2) sont multipliées par une fonction impaire dans (48) et la dérivée d'ordre impair (dérivée première) par une fonction paire.

Le développement de V_1 en polynôme de x est possible mais malaisé. En posant :

$$V_1 = a_0 + a_2 x^2 + a_4 x^4 + \ldots \quad (49)$$

et en transportant dans (48) où l'on a développé $\sin(x/R)$ et $\cos(x/R)$, on obtient le système de récurrence suivant, qui permet le calcul des coefficients a_0, a_1, a_2... :

$$\left\{\begin{array}{l} \dfrac{\omega^2 a_0 + 2.2.a_2}{1!} = 0 \\ \dfrac{\omega^2 a_0 + 2.4.a_2}{3!\,R^2} - \dfrac{\omega^2 a_2 + 4.4.a_4}{1!} = 0 \\ \dfrac{\omega^2 a_0 + 2.6.a_2}{5!\,R^4} - \dfrac{\omega^2 a_2 + 4.6.a_4}{3!\,R^2} \\ \qquad + \dfrac{\omega^2 a_4 + 6.6.a_6}{1!} = 0. \ldots. \text{ etc.} \quad (50) \end{array}\right.$$

Quant à la fonction V_2, c'est obligatoirement une série à deux entrées ; le calcul *direct* des coefficients est inextricable.

La fonction U cherchée peut aussi être développée en fonction de sin (x) ou de cos (x). On obtient assez facilement des séries convergentes. La fonction en série de terme général $a_p . \cos^p (x/R)$ est intéressante, parce qu'elle donne deux séries, l'une paire et l'autre impaire, *à une seule entrée*, avec une loi très simple de récurrence pour les coefficients ; on a donc :

$$U = \sum_{n=0}^{\infty} a_{2n} . \cos^{2n}(x/R) + \sum_{n=0}^{\infty} a_{2n+1} \cos^{2n+1}(x/R) \quad (51)$$

avec, pour déterminer les coefficients :

$$a_{n+2} = \frac{n(n+1) - \omega^2 R^2}{(n+1)(n+2)} a_n \quad (52)$$

d'où la solution générale :

$$U = \left\{ \begin{array}{l} a_0 \left[1 - \frac{\omega^2 R^2}{2!} \cos^2 \left(\frac{x}{R}\right) \right. \\ \qquad \left. - \frac{\omega^2 R^2 (2.3. - \omega^2 R^2)}{4!} \cos^4 \left(\frac{x}{R}\right) - \ldots \right] \\ + a_1 \left[\cos \left(\frac{x}{R}\right) \right. \\ \left. + \frac{1.2 - \omega^2 R^2}{2.3.} \cos^3 \left(\frac{x}{R}\right) + \ldots \right] \end{array} \right. \quad (53)$$

a_0 et a_1 sont deux constantes arbitraires *indépendantes*.

On peut également obtenir la fonction U comme une série de termes en $\mathrm{tg}^p (x)$ ou en $\cot^p (x)$. Nous avons de même trouvé un développement intéressant de terme général $a_p . \cos (p . x/R)$, qui permet de retrouver les développements en x^p. Ce développement constitue une somme, à coefficients arbitraires, de deux séries à double entrée ; mais ces séries sont équivalentes à des séries à une entrée, si l'on remarque que

$$\cos (p . x/R) = + \cos (- p . x/R).$$

La solution en deux séries de sin x/R s'obtient exactement comme la solution en deux séries de cosinus. Le terme général de ces deux séries est donné par la loi simple de récurrence :

$$a_{n+2} = a_n \frac{n(n+1) - \omega^2 R^2}{(n+2)^2} \quad (54)$$

$$U = \left\{ \begin{array}{l} a_0 \left[1 - \frac{\left(\frac{\omega R}{2}\right)^2}{(1!)^2} \sin^2 \left(\frac{x}{R}\right) \right. \\ \qquad \left. + \frac{\left(\frac{\omega R}{2}\right)^4 - \frac{2.3 \omega^2 R^2}{2^4}}{(2!)^2} \sin^4 \left(\frac{x}{R}\right) - \ldots \right] \\ + a_1 \left[\ldots - \frac{1}{\omega^2 R^2} \sin^{-1} \left(\frac{x}{R}\right) + \sin \left(\frac{x}{R}\right) \right. \\ \qquad \left. - \frac{\omega^2 R^2 - 1.2.}{3^2} \sin^3 \left(\frac{x}{R}\right) + \ldots \right]. \end{array} \right. \quad (55)$$

On a donc une série *paire* à *une entrée*, qui tend vers $a_0 J_0(\omega x)$ quand R tend vers l'infini, et une série *impaire* à *deux entrées*, croissant indéfiniment en valeur absolue lorsque x tend vers zéro, et tendant à la fonction adjointe $a_1 N_0(\omega x)$, lorsque R tend vers l'infini. *Le maniement de ces deux séries est absolument le même que celui des séries de fonctions de Bessel.*

13. **Passage à la diffusion dans un espace courbe.** — Les expressions trouvées dans le paragraphe précédent sont importantes, car elles permettent non seulement les calculs de diffusion à la surface d'une sphère, mais encore l'établissement des équations de la diffusion dans un espace courbe à n dimensions et à courbure constante.

En effet, la diffusion dans un fil courbe suivant une circonférence (espace courbe à une dimension) peut s'exprimer, en prenant pour unité de longueur, le rayon de courbure, par :

$$\omega^2 U + \frac{(\sin^0 (x/R))'}{\sin^0 (x/R)} U' + U'' \equiv \omega^2 U + U'' = 0. \quad (56)$$

Lorsqu'on passe à un espace à deux dimensions (*surface* de la sphère) la fonction s devient $\sin^1 (x/R)$. En raisonnant comme nous l'avons fait pour l'espace rectiligne à n dimensions, il n'est pas besoin de beaucoup d'imagination pour établir que s pour 3 dimensions, est $\sin^2 (x/R)$, et ainsi de suite. Pour n dimensions l'équation fondamentale est donc :

$$\omega^2 U + \frac{(\sin^{n-1} (x/R))'}{\sin^{n-1} (x/R)} U' + U'' = 0 \quad (57)$$

ou

$$\omega^2 U + \frac{(n-1) \cos (x/R)}{R \sin (x/R)} U' + U'' = 0. \quad (58)$$

On retrouve une progression analogue à celle que nous avons obtenue pour l'espace à n dimensions sans courbure, qui n'est qu'une *limite de l'espace courbe* quand R devient infini.

La fonction U relative à un espace courbe à n dimensions s'exprime donc par une fonction $U_{(p)}$ où $p = n - 1$, de façon tout à fait similaire à ce que nous avons vu pour l'espace rectiligne.

Les formules de récurrence sont analogues aux précédentes, *mais* ω *doit être modifié*.

L'équation (43) devient, pour passer de $n = p + 1$ dimensions à $n = p + 3$

$$U_{(p+2)}(\omega, x) . \sin (x/R) = - U'_{(p)} (\sqrt{\omega^2 + (n/R^2)}, x) \quad (59)$$

De même, pour rétrograder de $n = p + 3$ à $n = p + 1$ on a :

$$U'_{(p)}(\omega, x) = - U_{(p+2)} (\sqrt{\omega^2 - (n/R^2)}, x) . \sin (x/R) \quad (60)$$

Ainsi toutes les fonctions relatives *à n impair* dérivent *de la fonction sinusoïdale*. En effet, pour

l'espace à 1 dimension, l'équation de la chaleur est indépendante de la courbure ($n = 1$, $p = 0$) ; la solution générale est donc ici aussi :

$$U_{(0)} = A \sin (\omega x) + B \cos (\omega x). \quad (61)$$

En appliquant (58) on trouve, A' et B' étant des constantes *quelconques*

$$U_{(2)} = A' \sin (x\sqrt{\omega^2 + 1})/\sin x + B' \cos (x\sqrt{\omega^2 + 1})/\sin x \quad (62)$$

comme solution de l'équation

$$\omega^2 U_{(2)} + [(2 \cos x)/(\sin x)]\, U'_{(2)} + U''_{(2)} = 0. \quad (63)$$

De même pour U_4, U_6, etc...

Quant aux fonctions relatives à n pair ou nul, *elles dérivent toutes de la fonction définie par* (55) dont on peut juger ainsi l'importance.

14. **Formules générales de récurrence.** — Les calculs généraux faits au début de ce travail s'appliquent à toutes les fonctions particulières étudiées ensuite, et permettent d'établir par exemple l'équation balistique de la diffusion de la chaleur pour un espace courbe. De cette équation balistique, on peut par intégration passer à la plupart des problèmes de la diffusion dans un milieu fini, isotrope et constant. Si le milieu considéré est indéfini, on peut concevoir *des intégrales des fonctions U* analogues à l'intégrale de Fourier.

Les fonctions U nous donnent un exemple de fonctions liées à une autre fonction s par un cheminement complexe mais parfaitement défini. Nous disons que les fonctions U sont des fonctions *résultantes* de s (puisque *la forme de l'équation U* de la diffusion *résulte* de la *forme du tube de flux donnée par s*), ce que nous exprimons par $U((s))$. D'autre part, nous appelons $U_{(p)}((s))$ la fonction définie par :

$$\omega^2 U_{(p)} + p(s'/s) \cdot U'_{(p)} + U''_{(p)} = 0 \quad (64)$$

et nous disons que $U_{(p)}$ est la fonction U d'ordre p résultante de s.

Nous voyons immédiatement une propriété évidente des fonctions U résultantes. On peut écrire en effet :

$$U_p((s)) = U_1((s^p)) = U_n((s^{p/n})). \quad (65)$$

On peut donc, *à une puissance* d'une fonction $s(x)$, faire correspondre *un ordre* de la fonction résultante et inversement.

Pour les fonctions définies par l'équation (64) on peut trouver des formules de récurrence analogues à (43) ou (59). Ces formules sont généralement plus compliquées. Si cependant on peut poser :

$$s = f^n(x) \quad (66)$$

et si

$$f''/f = m \quad (67)$$

autrement dit si f est une constante, un monôme du premier degré, une simple exponentielle, un terme sinus (circulaire ou hyperbolique), on obtient :

$$\begin{cases} U_{(n+1)}(\omega, x) . f = - U'_{(n-1)}(x, \sqrt{\omega^2 - nm}) \\ U'_{(n-1)}(\omega, x) = - U_{(n+1)}(x, \sqrt{\omega^2 + nm}) . f. \end{cases} \quad (68)$$

On retrouve (43) en faisant $f = x$ et on obtient (59) en faisant $f = \sin (x/R)$.

Remarquons pour terminer que les formules de récurrence telles que (68) ne sont définies qu'à un facteur constant près.

15. **Fonction impulsion.** — La fonction impulsion dans un intervalle de flux défini par ses abscisses extrêmales a et b est donnée à partir de l'équation (25). Cette dernière exprime une fonction nulle dans tout l'intervalle a, b sauf entre les abscisses l et $l + \mathrm{d}l$ où elle vaut $A = W \,\mathrm{d}u/\gamma s$ (amplitude de l'impulsion), Lorsque l'impulsion a l'amplitude A constante entre deux abscisses l_1 et l_2 une simple intégration permet d'exprimer la fonction impulsion dans tout l'intervalle ab.

$$y = 2A \sum_{p=0}^{\infty} \frac{\omega_p\, U_p(x)}{\Delta(sZ_p)} \int_{l_1}^{l_2} U_p(l) . s(l) . \mathrm{d}l \quad (69)$$

y est nul dans tout l'intervalle a, b sauf entre l_1 et l_2 où il vaut A.

Pour exprimer la fonction en créneau, c'est-à-dire une fonction telle que y vaut A entre les abscisses $0 - l_1$, $l_2 - l_3$, $l_4 - l_5$, etc... et zéro entre les abscisses $l_1 - l_2$, $l_3 - l_4$, etc... il suffit d'écrire s'il y a n créneaux :

$$y = 2A \sum_{p=0}^{\infty} \frac{\omega_p\, U_p(x)}{\Delta(sZ_p)} \sum_{q=0}^{q=n-1} \int_{l_{2q}}^{l_{2q+1}} U_p(l) . s(l) . \mathrm{d}l. \quad (70)$$

On voit donc, pour tous ces problèmes, l'importance de l'intégrale

$$\int_a^b U(l) . s(l) . \mathrm{d}l.$$

Cette intégrale *existe toujours. L'intégration se fait immédiatement* à partir de l'équation fondamentale (7) qui s'exprime :

$$U . s = - \frac{1}{\omega^2} \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}x} (sU')$$

donc

$$\int_a^b U . s . \mathrm{d}x = - \frac{1}{\omega^2} (s(b)\, U'(b) - s(a)\, U'(a)). \quad (71)$$

Conclusions. Chaque fois que l'écoulement thermique se fait par des chemins déterminés, l'équation (30) donne l'expression de la température en un point quelconque à un instant quelconque. Cette équation est valable après transpo-

sition des symboles, pour tous les phénomènes diffusifs, mais aussi pour les phénomènes ondulatoires, l'équation de Schrödinger étant formellement semblable à l'équation (11). Les valeurs de ω imposées par les conditions aux limites correspondent aux niveaux permis d'énergie de la mécanique quantique, etc... Nous espérons que le présent travail aura ainsi contribué, pour une part modeste certes, à l'élaboration d'une physique plus unifiée, rêve de tout physicien. Il serait souhaitable, à ce point de vue, que les équations générales comme (30) soient exprimées en *symboles universels.*

L'équation-impulsion (69) s'exprime sous une forme analytique relativement simple par une série *sans quadrature* grâce à l'équation (71)

$$y = 2A \sum_{p=0}^{\infty} \frac{U_p(x)\, \Delta_{l_1}^{l_2}(sU'_p)}{\omega_p\, \Delta_a^b(sZ_p)} \qquad (72)$$

ce qui permet son introduction directe dans les calculs (et dans les calculateurs électroniques). Tous les calculs et l'établissement des équations peuvent se faire sans recours au calcul symbolique, ce qui permet de ne jamais lâcher la rampe du réel et des significations physiques.

Enfin, l'introduction de la notion de champ de diffusion lié aux chemins thermiques (tubes de flux) et de la corrélation entre la *forme de ce champ* (fonction s) et la forme de *l'équation résultante U* montre l'intérêt qu'il y aurait à introduire les notions géométriques de champ à mailles « carrées » [6] et de représentation conforme, pour la solution des problèmes concrets relatifs à la diffusion et à tous les phénomènes qui s'y relient formellement.

Manuscrit reçu le 16 décembre 1960.

NOTES BIBLIOGRAPHIQUES

[1] *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **244**, 1163-1166 ; 1957, **245**, 144-147 ; 1957, **245**, 2218-2221.

[2] Cette équation est connue depuis longtemps voir, par exemple :

Poincaré (H.), Théorie analytique de la propagation de la chaleur, G. Carré, Éditeur, Paris, 1895, chap. 15, p. 252 et suivantes.

Fabry (Ch.), Propagation de la chaleur, A. Colin, Éditeur, Paris, 1949, p. 80 et suivantes (solutions normales), etc...

Voici comment l'obtenir :

Dans l'équation fondamentale (3) on peut séparer les variables indépendantes t et x et poser $\theta = \alpha f(x) . g(t)$ ce qui donne, s étant fonction de x seul (les dérivations étant exprimées par rapport à la variable unique de chaque fonction) :

$$s\alpha f g' = hs\alpha f'' g + hs'\alpha f' g \qquad (73)$$

ou en divisant par $hs\theta$

$$\frac{g'}{hg} = \frac{f''}{f} + \frac{s'}{s}\frac{f'}{f}. \qquad (74)$$

Comme les variables t et x sont indépendantes cette expression ne se vérifie que si les deux membres, l'un fonction seulement de t, l'autre de x, sont identiquement constants, et égaux à une valeur négative $-\omega^2$ (la valeur positive $+\omega^2$ est à écarter parce qu'elle conduit à des termes instables par rapport au temps ce qui est à rejeter).

On a donc $g'/hg = -\omega^2$ d'où à un facteur constant près $g = e^{-\omega^2 ht}$.

Donc $\theta = \alpha f(x) . e^{-\omega^2 ht}$ et l'on obtient la solution générale en prenant toutes les valeurs permises de ω, ce qui donne l'équation (4). L'équation (5) s'obtient en égalant le deuxième membre de (74) à $-\omega^2$.

[3] Voir par exemple : Valiron (G.), Cours d'analyse mathématique : Équations fonctionnelles, Masson, Paris, 1945, p. 361 et suivantes. Le calcul des coefficients est indiqué à la page 367.

[4] Cf. Petiau, La théorie des fonctions de Bessel, Éditions du C. N. R. S., 1955, p. 269 sq. et tous les traités spéciaux.

[5] Camia, *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **245**, 144-147. Voir également : Carslaw et Jaeger, Conduction of Heat in Solids, Clarendon Press, Oxford, p. 208 et suivantes. Ingersoll (L. R.), Zobel (O. J.) and Ingersoll (A. C.), Heat Conduction, McGraw-Hill, New York, 1948, p. 162 et suivantes.

[6] Granier (J.), Introduction à l'étude des champs physiques, Dunod, Paris, 1941.

Veron (M.), Champs thermiques et flux calorifiques, Bulletin BW, Hermann et Cie, Paris, 1952, p. 54 et suivantes.

DÉVELOPPEMENT DU MOMENT DIPOLAIRE DES MOLÉCULES EN FONCTION DES COORDONNÉES DE SYMÉTRIE. II.

Par GEORGE GRANER

Laboratoire d'Infrarouge, 12, rue Cuvier, Paris (5e)
(Laboratoire de Chimie Physique).

Résumé. — On développe le moment dipolaire des molécules des différents groupes de symétrie par rapport aux coordonnées normales ou symétriques en indiquant les coefficients ${}^{\alpha}d_i$ et ${}^{\alpha}d_{ij}$ du développement qui sont nuls ou liés par des relations.

Abstract. — For molecules belonging to the different symmetry groups, the dipole moment is developed in terms of normal of symmetrical coordinates, and vanishing or non-independant efficients ${}^{\alpha}d_i$ or ${}^{\alpha}d_{ij}$ of that development are given.

II. DÉVELOPPEMENT DU MOMENT DIPOLAIRE EN FONCTION DES COORDONNÉES NORMALES OU DES COORDONNÉES DE SYMÉTRIE

2-1. **Introduction.** — Nous avons vu (*) qu'on ne peut interpréter les mesures d'intensité de molécules en terme de grandeurs moléculaires que si on connaît les variations du moment dipolaire au cours des diverses vibrations. Ces variations s'obtiennent en développant le moment dipolaire de la molécule en fonction des coordonnées qui décrivent ses vibrations.

Si les coordonnées choisies sont des coordonnées symétriques ou des coordonnées normales, la théorie des groupes permet de trouver des relations entre les coefficients de ces développements et de préciser ceux de ces coefficients qui sont nuls. C'est ce que nous allons faire dans ce qui suit.

2-2. **Notations.** — 2-2-1. GROUPES ET TYPES DE SYMÉTRIE. — Nous utiliserons les notations qui figurent dans [43] : les groupes ponctuels de symétrie seront désignés par des lettres gothiques ($\mathfrak{C}$, $\mathfrak{D}$, $\mathfrak{S}$, $\mathfrak{J}$, $\mathfrak{T}$) et les types de symétrie par des majuscules (A, B, E, F ...).

2-2-2. — Les coordonnées normales seront désignées par q_i, q_j, lorsqu'il sera inutile de préciser le nombre de dimensions de la représentation dont elles forment une base. Sinon, une coordonnée normale non dégénérée sera désignée par q_n, une paire de coordonnées normales doublement dégénérées par q_{s^1} et q_{s^2} (résumé en $q_{s\sigma}$) et un ensemble de coordonnées normales triplement dégénérées par q_{t^1}, q_{t^2} et q_{t^3} (résumé en $q_{t\theta}$).

Les raisonnements qui vont suivre sont encore valables si les coordonnées q_i sont des coordonnées symétriques et non des coordonnées normales.

(*) Voir 1re partie, *J. Physique Rad.*, avril 1961, **22,** 215.

2-2-3. — Les opérations appartenant au groupe de symétrie de la molécule seront représentées par $R_1, R_2, \dots R_k \dots$

La matrice de transformation d'une coordonnée normale q_i lorsqu'on effectue l'opération R_k sur la molécule sera désignée par $\boldsymbol{G}_i(R_k)$. La représentation constituée par l'ensemble des matrices $\boldsymbol{G}_i(R_k)$ est désignée par Γ_i.

2-2-4. — Les matrices seront représentées en caractères gras. En particulier :

$$\boldsymbol{M}_{xyz} = \begin{pmatrix} M_x \\ M_y \\ M_z \end{pmatrix} \qquad \boldsymbol{M}_{xy} = \begin{pmatrix} M_x \\ M_y \end{pmatrix} \qquad \boldsymbol{M}_{\alpha} = (M_{\alpha})$$

$$(\alpha = x, y, z).$$

La notation $\boldsymbol{M}$ désignera une quelconque des matrices précédentes, selon le cas.

Les matrices de transformation des différents $\boldsymbol{M}$ au cours d'une opération R_k seront désignées par $\boldsymbol{G}_{xyz}(R_k)$, $\boldsymbol{G}_{xy}(R_k)$ ou $\boldsymbol{G}_{\alpha}(R_k)$ selon le cas et les représentations correspondantes par Γ_{xyz}, Γ_{xy} ou Γ_{α}. Les différents cas seront résumés en $\boldsymbol{G}_u(R_k)$ et Γ_u.

2-2-5. — Le développement d'une composante de $\vec{M}$ en fonction des coordonnées normales sera écrit de la façon suivante :

$$M_{\alpha} = {}^{\alpha}d_0 + \sum_i {}^{\alpha}d_i \cdot q_i + \sum_{i \leqslant j} {}^{\alpha}d_{ij} \cdot q_i \cdot q_j$$

le coefficient d prenant comme indice supérieur gauche x, y ou z selon le cas et pour indices inférieurs à droite les mêmes indices que les coordonnées normales qui le suivent.

2-3. **Principe de la méthode.** — Si l'on effectue sur une molécule une opération R_k du groupe de symétrie, chaque composante M_{α} du moment dipolaire se transforme en général en une combinaison linéaire de M_x, M_y, M_z, de la même façon que la composante correspondante de la translation (3).

(3) Cf. à ce sujet, par exemple [43], p. 157.

En particulier, pour les toupies asymétriques, Γ_{xyz} est réductible en trois représentations irréductibles Γ_x, Γ_y et Γ_z. Pour les toupies symétriques et linéaires, Γ_{xyz} se réduit en Γ_{xy} bidimensionnelle [4] et Γ_z unidimensionnelle. Enfin, pour les toupies sphériques, Γ_{xyz} est irréductible.

Le tableau I rappelle les groupes de symétrie auxquels correspondent les appellations : toupies asymétriques — symétriques — sphériques — linéaires.

TABLEAU I

Toupies asymétriques	$\mathcal{C}_s$ $\mathcal{C}_i$ $\mathcal{C}_2$ $\mathcal{C}_{2v}$ $\mathcal{C}_{2h}$ $\mathcal{D}_2$ $\mathcal{D}_{2h}$
Toupies symétriques	$\left.\begin{array}{l}\mathcal{C}_n^* \; \mathcal{C}_{nv} \; \mathcal{C}_{nh}^* \; \mathcal{D}_n \; \mathcal{D}_{nh} \\ \mathcal{D}_{2d} \; \mathcal{D}_{nd} \; \mathcal{S}_4^* \; \mathcal{S}_6^* \; \mathcal{S}_8^*\end{array}\right\} n = 3 \text{ à } 6$
Toupies linéaires	$\mathcal{C}_{\infty v}$ $\mathcal{D}_{\infty h}$
Toupies sphériques	$\mathcal{I}$ $\mathcal{I}_h$ $\mathcal{I}_d$ $\mathcal{O}$ $\mathcal{O}_h$ $\mathcal{T}$ $\mathcal{T}_h$

D'autre part, la même opération R_k transforme chaque coordonnée normale q_i en une combinaison linéaire de q_i et de ses coordonnées normales associées. Ainsi q_{t0} se transforme en une combinaison linéaire de q_{t^1}, q_{t^2} et q_{t^3} ; de même $q_{s\sigma}$ en une combinaison linéaire de q_{s^1} et q_{s^2} ; seul q_n ne se transforme qu'en $\pm q_n$.

Par suite, un monôme du développement de M_α, soit ${}^\alpha d_{ijl....}\, q_i\, q_j\, q_l \ldots$ se transformera en une combinaison linéaire du monôme et de ses monômes associés. On désigne sous ce nom tous les monômes obtenus en remplaçant, d'une façon quelconque, q_i par une de ses coordonnées associées, q_j par une de ses coordonnées associées . . . [5].

La somme d'un monôme et de ses monômes associés constitue un polynôme P_α qui doit se comporter comme M_α pour toutes les opérations R_k [6].

Ceci veut dire que les trois polynômes P_x, P_y et P_z constituent la base d'une représentation du groupe équivalente à la représentation Γ_{xyz}.

Pour les toupies asymétriques, si la représentation de base P_α n'est pas équivalente à Γ_α, c'est que les coefficients du polynôme P_α sont tous nuls.

De même pour les toupies symétriques et linéaires on doit avoir nullité des coefficients ou équivalence entre la représentation de base P_z et Γ_z et de même entre la représentation de base P_x, P_y et Γ_{xy}.

Enfin, pour les toupies sphériques, Γ_{xyz} est équivalent à la représentation de base P_x, P_y, P_z sous peine de nullité des coefficients de ces polynômes.

(4) Γ_{xy} est une représentation pseudo-irréductible au sens exposé à l'appendice I, pour les groupes marqués d'un astérique dans le tableau I.

(5) Exemple : au monôme ${}^\alpha d_{a^1b^1} \cdot q_{a^1} \cdot q_{b^1}$ il faut associer les trois monômes ${}^\alpha d_{a^2b^1} \cdot q_{a^2} \cdot q_{b^1}$, ${}^\alpha d_{a^1b^2} \cdot q_{a^1} \cdot q_{b^2}$ et ${}^\alpha d_{a^2b^2} \cdot q_{a^2} \cdot q_{b^2}$.

(6) Dans l'exemple ci-dessus :

$$P_\alpha = {}^\alpha d_{a^1b^1} \cdot q_{a^1} \cdot q_{b^1} + {}^\alpha d_{a^2b^1} \cdot q_{a^2} \cdot q_{b^1} + {}^\alpha d_{a^1b^2} \cdot q_{a^1} \cdot q_{b^2} + {}^\alpha d_{a^2b^2} \cdot q_{a^2} \cdot q_{b^2}.$$

Ce sont les applications de cette méthode que nous allons maintenant développer. On notera qu'elle ne donne que les cas de nullité des coefficients. Les coefficient que nous dirons « non-nuls » peuvent fort bien se révéler nuls par l'application de méthodes plus poussées.

2-4. **Toupies asymétriques.** — Développement de M_α.

2-4-1. — Ces molécules ne possédant pas d'axes d'ordre supérieur à 2, il n'existe pas de vibrations dégénérées. Le raisonnement est ici particulièrement simple. Nous ne donnerons que la règle obtenue :

Considérons un monôme quelconque du développement de soit :

$$m = {}^\alpha d_{n,n',n''....} \cdot q_n \cdot q_{n'} \cdot q_{n''} \ldots$$

Pour savoir si le coefficient ${}^\alpha d$ correspondant est nul ou non, il faut opérer de la façon suivante :

— considérer les types de symétrie des représentations Γ_n, $\Gamma_{n'}$, $\Gamma_{n''}$ ... dont q_n, $q_{n'}$, $q_{n''}$ ... sont les bases ;

— compter le nombre de fois où chaque type de symétrie intervient dans ce monôme et éliminer ceux de ces types qui interviennent un nombre pair de fois ;

— faire le produit direct des représentations des types de symétrie non éliminés précédemment, chacun ne comptant qu'une fois, en utilisant les règles bien connues [7] ;

— comparer le résultat de ce produit direct à Γ_α. Si ces deux types sont différents, ${}^\alpha d$ est nécessairement nul. S'ils sont identiques, ${}^\alpha d$ est non nul *en général.*

N. B. — Si chaque type de symétrie intervient un nombre pair de fois, il faut considérer le produit direct comme entièrement symétrique.

2-4-2. Exemple. — La molécule H_2CO du groupe de symétrie $\mathcal{C}_{2v}$ a 6 vibrations normales non dégénérées, trois de type $A_1(\nu_1, \nu_2, \nu_3)$, deux de type $B_1(\nu_4, \nu_5)$ et une de type $B_2(\nu_6)$. D'autre part les représentations Γ_x, Γ_y, Γ_z sont du type B_1, B_2 et A_1 respectivement.

Considérons les monômes du type

$$(q_1) \cdot (q_3)^2 \cdot (q_4)^3 \cdot (q_5)^2 \cdot (q_6)^4.$$

D'après la règle précédente : A_1 intervient 3 fois, B_1 5 fois et B_2 4 fois. Il faut donc considérer le produit direct $A_1 \times B_1 = B_1$. Comme seul M_x est de type B_1, le coefficient ${}^x d$ correspondant ne sera pas nul alors que les coefficients ${}^y d$ et ${}^z d$ seront nuls.

A titre d'exemple, nous donnons ci-dessous les

(7) Cf. par exemple [43], p. 331 ou [44], p. 126.

termes non nuls des développements M_x, M_y, M_z limités aux termes du 2e degré :

$$M_x = {}^xd_4\, q_4 + {}^xd_5\, q_5 + {}^xd_{14}\, q_1\, q_4 + {}^xd_{15}\, q_1\, q_5 + {}^xd_{24}\, q_2\, q_4 + {}^xd_{25}\, q_2\, q_5 + {}^xd_{34}\, q_3\, q_4 + {}^xd_{35}\, q_3\, q_5$$

$$M_y = {}^yd_6\, q_6 + {}^yd_{16}\, q_1\, q_6 + {}^yd_{26}\, q_2\, q_6 + {}^yd_{36}\, q_3\, q_6$$

$$M_z = {}^zd_0 + {}^zd_1\, q_1 + {}^zd_2\, q_2 + {}^zd_3\, q_3\, d_3\, q_3 + \sum_{i=1}^{6} {}^zd_{ii}(q_i)^2 + {}^zd_{12}\, q_1\, q_2 + {}^zd_{13}\, q_1\, q_3 + {}^zd_{23}\, q_2\, q_3 + {}^zd_{45}\, q_4\, q_5.$$

Il ne reste donc que, respectivement 8, 4 et 14 coefficients non nuls au lieu des 28 qu'on pouvait attendre pour chacun de ces développements.

2-5. **Toupies symétriques et linéaires. Développement de M_z.**

Les molécules de ce type possèdent des vibrations doublement dégénérées. Les composantes M_x et M_y appartiennent à une représentation Γ_{xy} bidimensionnelle et la composante M_z à une représentation Γ_z unidimensionnelle. Nous considérerons donc, indépendamment, d'une part le développement de M_z, d'autre part celui de M_x et M_y.

Pour M_z, nous sommes amenés à distinguer les différents monômes du développement selon leur degré par rapport aux coordonnées normales.

2-5-1. Terme constant ${}^zd_0$. — Ce terme est nul si la représentation Γ_z n'est pas entièrement symétrique et en général non nul si Γ_z est entièrement symétrique. En effet, si Γ_z n'est pas entièrement symétrique il y a au moins une opération R_k qui transforme M_z en $-M_z$ alors que ${}^zd_0$ ne change pas. Donc ${}^zd_0 = 0$.

Les seuls groupes de toupies symétriques ou ${}^zd_0$ est non nul sont : $\mathcal{C}_n$, $\mathcal{C}_{nv}$ et $\mathcal{C}_{\infty v}$ ($n = 3$ à 6).

2-5-2. Termes du 1er degré. — Pour les monômes de la forme ${}^zd_i\, q_i$, le coefficient ${}^zd_i$ est nul sauf si $q_i = q_n$ (coordonnée non dégénérée) et si la représentation Γ_n est équivalente à Γ_z.

Ce résultat se déduit du théorème exposé à l'appendice II dans le cas particulier où $m = 1$ et où Γ_u se réduit à Γ_z.

2-5-3. Termes du 2e degré. — Parmi les monômes du second degré ${}^zd_{ij}\; q_i\, q_j$ il faut distinguer trois formes :

— Monôme ${}^zd_{nn'}\, q_n\, q_{n'}$ où les deux coordonnées normales qui interviennent sont non dégénérées ($n = n'$ ou $n \neq n'$).

— Monôme ${}^zd_{n,s\sigma} \cdot q_n \cdot q_{s\sigma}$: l'une dégénérée, l'autre non.

— Monôme ${}^zd_{s\sigma,s'\sigma'} \cdot q_{s\sigma} \cdot q_{s'\sigma'}$ ($s = s'$ ou $\neq s'$, $\sigma = \sigma'$ ou $\neq \sigma'$).

Les résultats sont les suivants :

— les coefficients ${}^zd_{nn'}$ sont nuls sauf si le produit direct $\Gamma_n \times \Gamma_{n'}$ est équivalent à Γ_z ;

— les coefficients ${}^zd_{n,s\sigma}$ sont nuls ;

— les coefficients ${}^zd_{s\sigma,s'\sigma'}$ sont nuls sauf si le produit direct $\Gamma_s \times \Gamma_z$ est équivalent à $\Gamma_{s'}$. Dans le cas où cette équivalence est réalisée, les 4 coefficients ${}^zd_{s\sigma,s'\sigma'}$ correspondant aux différentes valeurs de σ et σ' ne sont pas indépendants et peuvent s'exprimer en fonction de 2 ou de 1 d'entre eux. Le tableau II indique, suivant les groupes de symétrie, les couples Γ_s, $\Gamma_{s'}$ tels que les coefficients ne sont pas nuls et le nombre d'entre eux qui sont indépendants. La nature des relations existant entre ces coefficients se trouve simplement pour chaque groupe considéré ([8]).

TABLEAU II

Coefficients ${}^zd_{s\sigma,s'\sigma'}$ non nuls pour les toupies symétriques et linéaires

Nature des groupes de symétrie	Type de symétrie de Γ_s	Type de symétrie de $\Gamma_{s'}$
$\mathcal{C}_3^*$ $\mathcal{C}_4^*$ $\mathcal{D}_3$ $\mathcal{D}_4$ $\mathcal{C}_{3v}$ $\mathcal{C}_{4v}$ $\mathcal{D}_{2d}$ $\mathcal{S}_4^*$	E	E
$\mathcal{C}_5^*$ $\mathcal{C}_6^*$ $\mathcal{D}_5$ $\mathcal{D}_6$ $\mathcal{C}_{5v}$ $\mathcal{C}_{6v}$	E_1	E_1
	E_2	E_2
$\mathcal{C}_{3h}^*$ $\mathcal{D}_{3h}$	E'	E''
$\mathcal{C}_{4h}^*$ $\mathcal{D}_{4h}$ $\mathcal{D}_{3d}$ $\mathcal{S}_6^*$	E_u	E_g
$\mathcal{C}_{5h}^*$ $\mathcal{D}_{5h}$	E_1'	E_1''
	E_2'	E_2''
$\mathcal{C}_{6h}$ $\mathcal{D}_{6h}$ $\mathcal{D}_{5d}$	E_{1u}	E_{1g}
	E_{2u}	E_{2g}
$\mathcal{D}_{4d}$ $\mathcal{S}_8^*$	E_1	E_3
	E_2	E_2
$\mathcal{D}_{6d}$	E_1	E_5
	E_2	E_4
	E_3	E_3
$\mathcal{C}_{\infty v}$	$E_1 = \Pi$	$E_1 = \Pi$
	$E_2 = \Delta$	$E_2 = \Delta$
$\mathcal{D}_{\infty h}$	$E_{1u} = \Pi_u$	$E_{1g} = \Pi^g$
	$E_{2u} = \Delta_u$	$E_{2g} = \Delta^g$

Groupes avec un astérisque : les 4 d s'expriment en fonction de deux d'entre eux.

Groupes sans astérisque : les 4 d s'expriment en fonction d'un seul d'entre eux.

Démonstration :

Pour les coefficients ${}^zd_{nn'}$, il suffit d'appliquer la méthode décrite au paragraphe 2-4-1, encore valable ici.

Pour les coefficients ${}^zd_{n,s\sigma}$, nous pouvons utiliser l'appendice III avec $r = 1$, $t = 2$, $m = 1$. Comme Γ_v est alors irréductible de dimension $rt > m$, l'équation (13) entraîne que $\boldsymbol{d}$ est nul, donc tous les ${}^zd_{n,s\sigma}$.

([8]) Il suffit pour cela d'effectuer sur le polynôme P_z correspondant les opérations de symétrie du groupe particulier considéré. Une seule de ces opérations suffit en général à donner les relations cherchées.

Pour les coefficients ${}^z d_{s\sigma s'\sigma'}$, l'appendice V s'applique avec $r = t = 2$, $m = 1$. Il en résulte qu'on doit comparer Γ_z au résultat de la réduction du produit direct $\Gamma_s \times \Gamma_{s'}$. Selon le cas, cette réduction contient 2, 1 ou 0 fois Γ_z. Il en résulte que les 4 coefficients ${}^z d$ s'expriment en fonction de deux d'entre eux, ou d'un seul, ou encore qu'ils sont tous les 4 nuls ($\boldsymbol{d} = 0$).

L'appendice VI montre que lorsqu'on désire simplement savoir si $\boldsymbol{d}$ est nul, il suffit de faire le produit direct $\Gamma_s \times \Gamma_z$ ce qui est très simple (7). Si $\Gamma_s \times \Gamma_z = \Gamma_{s'}$, $\boldsymbol{d} \neq 0$. Si $\Gamma_s \times \Gamma_z \neq \Gamma_{s'}$, $\boldsymbol{d} = 0$.

2-5-4. Exemples.

Exemple 1 : La molécule C_2H_2, du type de symétrie $\mathcal{D}_{\infty h}$ possède 5 vibrations fondamentales $\nu_1(\Sigma_g^+)$, $\nu_2(\Sigma_g^+)$, $\nu_3(\Sigma_u^+)$, $\nu_4(\Pi_g)$ et $\nu_5(\Pi_u)$. La composante M_z est du type Σ_u^+.

Des considérations précédentes, il résulte :

— que le terme constant ${}^z d_0$ est nul,

— que tous les monômes du premier degré s'éliminent sauf ${}^z d_3\, q_3$,

— que parmi les monômes du second degré de la forme ${}^z d_{nn'} \cdot q_n \cdot q_{n'}$, seuls ne sont pas nuls ${}^z d_{13}\, q_1 q_3$ et ${}^z d_{23}\, q_2 q_3$,

— que les monômes du second degré de la forme ${}^z d_{n,s\sigma} \cdot q_n \cdot q_{s\sigma}$ s'éliminent,

— que parmi les monômes du second degré du type ${}^z d_{s\sigma,s'\sigma'}\, q_{s\sigma}\, q_{s'\sigma'}$, seuls ne sont pas nuls ceux en ${}^z d_{4\sigma,5\sigma'}\, q_{4\sigma}\, q_{5\sigma'}$. Entre les 4 coefficients de cette forme il existe 3 relations linéaires homogènes qu'on ne peut obtenir ici.

En conclusion le développement de M_z, arrêté au deuxième degré se réduit ici aux 7 termes suivants, les 4 coefficients soulignés pouvant s'exprimer en fonction d'un seul d'entre eux :

$$M_z = {}^z d_3\, q_3 + {}^z d_{13}\, q_1 q_3 + {}^z d_{23}\, q_2 q_3 + \underline{{}^z d_{4^1 5^1}}\, q_{4^1} q_{5^1} + \underline{{}^z d_{4^2 5^1}}\, q_{4^2} q_{5^1} + \underline{{}^z d_{4^1 5^2}}\, q_{4^1} q_{5^2} + \underline{{}^z d_{4^2 5^2}}\, q_{4^2} q_{5^2}.$$

Les 3 relations précitées ne peuvent être obtenues ici.

On trouve, dans ce cas particulier :

$${}^z d_{4^1 5^1} = {}^z d_{4^2 5^2} \qquad {}^z d_{4^2 5^1} = 0 \qquad {}^z d_{4^1 5^2} = 0.$$

Ce résultat est conforme à celui donné dans [40].

Exemple 2 : La molécule NH_3, du type de symétrie $\mathcal{C}_{3v}$ possède 4 vibrations fondamentales : ν_1 et ν_2 de type A_1, ν_3 et ν_4 de type E. La composante M_z est du type A_1.

Des considérations précédentes, il résulte dans le développement de M_z :

— que ${}^z d_0$ n'est pas nul,

— que, des monômes du premier degré, ne subsistent que ceux en q_1 et q_2,

— que, des monômes du second degré, seuls sont nuls ceux du type ${}^z d_{n,s\sigma}\, q_n\, q_{s\sigma}$, mais qu'il existe 3 relations entre les 4 coefficients ${}^z d_{s\sigma,s'\sigma'}$ (s et s' fixés, σ et σ' variables).

D'où la forme suivante du développement

$$\begin{aligned} M_z = {}^z d_0 &+ \{ {}^z d_1\, q_1 + {}^z d_2\, q_2 \} \\ &+ \{ {}^z d_{11} (q_1)^2 + {}^z d_{12}\, q_1 q_2 + {}^z d_{22} (q_2)^2 \} \\ &+ \{ \underline{{}^z d_{3^1 3^1}}\, (q_{3^1})^2 + \underline{{}^z d_{3^1 3^2}}\, q_{3^1} q_{3^2} + \underline{{}^z d_{3^2 3^2}}\, (q_{3^2})^2 \} \\ &+ \{ \underline{\underline{{}^z d_{3^1 4^1}}}\, q_{3^1} q_{4^1} + \underline{\underline{{}^z d_{3^1 4^2}}}\, q_{3^1} q_{4^2} + \underline{\underline{{}^z d_{3^2 4^1}}}\, q_{3^2} q_{4^1} \\ &+ \underline{\underline{{}^z d_{3^2 4^2}}}\, q_{3^2} q_{4^2} \} + \{ \underline{\underline{\underline{{}^z d_{4^1 4^1}}}}\, (q_{4^1})^2 + \underline{\underline{\underline{{}^z d_{4^1 4^2}}}}\, q_{4^1} q_{4^2} \\ &+ \underline{\underline{\underline{{}^z d_{4^2 4^2}}}}\, (q_{4^2})^2 \}. \end{aligned}$$

Mais de plus, on sait que les $\underline{{}^z d}$ peuvent s'exprimer en fonction d'un seul d'entre eux, de même pour les $\underline{\underline{{}^z d}}$ et les $\underline{\underline{\underline{{}^z d}}}$.

Dans ce cas particulier on trouve

$${}^z d_{3^1 3^1} = {}^z d_{3^2 3^2} \qquad {}^z d_{3^1 3^2} = 0$$

$${}^z d_{4^1 4^1} = {}^z d_{4^2 4^2} \qquad {}^z d_{4^1 4^2} = 0$$

$${}^z d_{3^1 4^1} = {}^z d_{3^2 4^2} \qquad {}^z d_{3^1 4^2} = 0 \qquad {}^z d_{3^2 4^1} = 0.$$

On est ainsi ramené à un développement à 9 termes seulement.

2-6. Toupies symétriques et linéaires : Développements de M_x et de M_y.

— Ces deux développements doivent être menés de front. Nous distinguerons encore les différents monômes suivant leur degré par rapport aux coordonnées normales.

2-6-1. Termes constants. — ${}^x d_0$ et ${}^y d_0$ sont nuls. En effet, s'ils ne l'étaient pas, la matrice colonne $\begin{pmatrix} {}^x d_0 \\ {}^y d_0 \end{pmatrix}$, qui doit se comporter comme $\boldsymbol{M}_{xy}$ par rapport à toutes les opérations de symétrique du groupe, serait un vecteur propre commun à toutes les matrices $\boldsymbol{G}_{xy}(R_k)$, qui seraient alors simultanément diagonalisables : ceci est impossible puisque la représentation Γ_{xy} est bidimensionnelle.

2-6-2. Termes du 1er degré. — Pour les monômes de la forme $d_i q_i$ ($\beta = x$ ou y), le coefficient ${}^\beta d_i$ est nul, sauf si $q_i = q_{s\sigma}$ (coordonnée doublement dégénérée), et si la représentation Γ_s est équivalente à Γ_{xy}. Dans ce cas, les 4 coefficients ${}^\beta d_{s\sigma}$ s'expriment en fonction de deux d'entre eux.

Ce résultat se déduit du théorème exposé à l'appendice II dans le cas particulier où $m = 2$ et où $\Gamma_u = \Gamma_{xv}$.

Il est à remarquer que le développement de M_x et de M_y ne contient au 1er degré aucun terme commun avec celui de M_z.

2-6-3. Termes du 2e degré. — Parmi les monômes du deuxième degré ${}^{\beta}d_{ij}\, q_i\, q_j$, trois formes sont à considérer :

— Monôme ${}^{\beta}d_{nn'} . q_n . q_{s\sigma}$. Le coefficient ${}^{\beta}d_{nn'}$ est nul ($n = n'$ ou $n \neq n'$).

TABLEAU III

Coefficients ${}^{x}d_{s\sigma,s'\sigma'}$ et ${}^{y}d_{s\sigma\, s'\sigma'}$ non nuls pour les toupies symétriques et linéaires

Nature des groupes de symétrie	Type de symétrie de Γ_s	$\Gamma_{s'}$
$\mathcal{C}_3$ $\mathcal{D}_3$ $\mathcal{C}_{3v}$	E	E
$\mathcal{C}_6$ $\mathcal{D}_6$ $\mathcal{C}_{6v}$	E_1	E_2
$\mathcal{C}_5$ $\mathcal{D}_5$ $\mathcal{C}_{5v}$	E_1	E_2
	E_2	E_2
$\mathcal{C}_{3h}$ $\mathcal{D}_{3h}$	E'	E'
	E''	E''
$\mathcal{D}_{3d}$ $\mathcal{S}_6$	E_g	E_u
$\mathcal{C}_{5h}$ $\mathcal{D}_{5h}$	E'_1	E'_2
	E''_1	E''_2
	E'_2	E'_2
	E''_2	E''_2
$\mathcal{C}_{6h}$ $\mathcal{D}_{6h}$	E_{1g}	E_{2u}
	E_{1u}	E_{2g}
$\mathcal{D}_{4d}$ $\mathcal{S}_8$	E_1	E_2
	E_2	E_3
$\mathcal{D}_{5d}$	E_{1g}	E_{2u}
	E_{1u}	E_{2g}
	E_{2u}	E_{2g}
$\mathcal{C}_{\infty v}$	Π	Δ
$\mathcal{D}_{\infty h}$	Π_g	Δ_u
	Π_u	Δ_g
$\mathcal{D}_{6d}$	E_1	E_2
	E_2	E_3
	E_3	E_4
	E_4	E_5
$\mathcal{D}_4$ $\mathcal{D}_{4h}$ $\mathcal{D}_{2d}$ $\mathcal{C}_4$ $\mathcal{C}_{4v}$ $\mathcal{C}_{4h}$ $\mathcal{S}_4$	Aucun	

— Monôme ${}^{\beta}d_{n,s\sigma} . q_n . q_{s\sigma}$. Le coefficient ${}^{\beta}d_{n,s\sigma}$ est nul sauf si le produit direct $\Gamma_n \times \Gamma_s = \Gamma_{xy}$. Dans ce cas, les 4 coefficients ${}^{\beta}d_{n,s\sigma}$ s'expriment en fonction de deux d'entre eux.

— Monôme ${}^{\beta}d_{s\sigma,s'\sigma'} . q_{s\sigma} . q_{s'\sigma'}$ (s = ou $\neq s'$, σ = ou $\neq \sigma'$).

Les coefficients sont nuls sauf si $\Gamma_s \times \Gamma_s$ contient la représentation Γ_{xy}, auquel cas, il existe 6 relations entre les 8 coefficients ${}^{\beta}d_{s\sigma,s'\sigma'}$ correspondant à s et s' fixés. Le tableau III indique les groupes pour lesquels certains coefficients ne sont pas nuls.

Démonstrations :

C'est l'appendice III qui est appliqué ici, avec $m = 2$.

— ${}^{\beta}d_{nn'}$, correspond au cas $r = t = 1$. Donc Γ_v a pour dimensions $rt < m$ et l'équation (13) entraîne $\boldsymbol{d} = 0$.

— ${}^{\beta}d_{n,s\sigma}$ correspond à $r = 1$, $t = 2$. L'équation (13) entraîne alors $\boldsymbol{d} = 0$ si $\Gamma_n \times \Gamma_s \neq \Gamma_{xy}$ et, si $\Gamma_n \times \Gamma_s = \Gamma_{xy}$, $\boldsymbol{d} \neq 0$ avec deux relations entre les 4 coefficients ${}^{\beta}d_{n,s\sigma}$.

— ${}^{\beta}d_{s\sigma,s'\sigma'}$, correspond à $r = t = 2$. Considérons la réduction du produit direct $\Gamma_s \times \Gamma_{s'}$. Si elle ne contient pas le type de symétrie de Γ_{xy}, on a $\boldsymbol{d} = 0$. Si elle le contient une fois, comme c'est le cas pour le tableau III, on a $\boldsymbol{\delta}_1 = \boldsymbol{\delta}_2 = 0$ et $\boldsymbol{\delta}_3 \neq 0$. Comme $\boldsymbol{\delta}_3$ est une matrice d'ordre 2, ses 4 éléments s'expriment en fonction de 2 d'entre eux (cf. Appendice I). Donc les 8 éléments de $\boldsymbol{\delta}$ et, par suite, les 8 coefficients ${}^{\beta}d_{s\sigma,s'\sigma'}$, s'expriment en fonction de deux d'entre eux.

2-6-4. Exemples :

Exemple 1 : Reprenons le cas de C_2H_2 (cf. 2-5-4) — Γ_{xy} est du type Π_u. Les considérations précédentes nous donnent les développements suivants :

$$M_x = \left\{ {}^{x}\bar{d}_{5^1}\, q_{5^1} + {}^{x}\bar{d}_{5^2}\, q_{5^2} \right\} + \left\{ \underline{{}^{x}d_{1,5^1}} . q_1 . q_{5^1} + \underline{{}^{x}d_{1,5^2}} . q_1 . q_{5^2} \right\}$$
$$+ \left\{ \underline{\underline{{}^{x}d_{2,5^1}}}\, q_2 . q_{5^1} + \underline{\underline{{}^{x}d_{2,5^2}}}\, q_2 . q_{5^2} \right\}$$
$$+ \left\{ \underline{\underline{\underline{{}^{x}d_{3,4^1}}}} . q_3 . q_{4^1} + \underline{\underline{\underline{{}^{x}d_{3,4^2}}}}\, q_3 . q_{4^2} \right\}.$$

Le développement de M_y est semblable, les coefficients ${}^{x}d$ étant remplacés par d. Mais les $\overline{4\,{}^{\beta}d}$ peuvent d'exprimer en fonction de 2 d'entre eux, de même les $4\,\underline{{}^{\beta}d}$, les $4\,\underline{\underline{{}^{\beta}d}}$ et les $4\,\underline{\underline{\underline{{}^{\beta}d}}}$. On a donc, en tout, pour les 3 composantes de $\vec{M}$: douze coefficients indépendants, en s'arrêtant au second degré.

Exemple 2 : Reprenons le cas de NH_3 (cf. 2-5-4). Γ_{xy} est du type E. D'où le développement suivant :

$$M_x = \left\{ \overline{{}^{x}d_{3^1}}\, q_{3^1} + \overline{{}^{x}d_{3^2}}\, q_{3^2} \right\} + \left\{ \overline{\overline{d_{4^1}}}\, q_{4^1} + \overline{\overline{{}^{x}d_{4^2}}}\, q_{4^2} \right\}$$
$$+ \left\{ \overline{\overline{\overline{{}^{x}d_{1,3^1}}}} . q_1 . q_{3^1} + \overline{\overline{\overline{{}^{x}d_{1,3^2}}}}\, q_1\, q_{3^2} \right\}$$
$$+ \left\{ {}^{x}d^{*}_{1,4^1} . q_1 . q_{4^1} + {}^{x}d^{*}_{1,4^2}\, q_1\, q_{4^2} \right\}$$
$$+ \left\{ {}^{x}d^{**}_{2,3^1}\, q_2\, q_{3^1} + {}^{x}d^{**}_{2,3^2}\, q_2\, q_{3^2} \right\}$$
$$+ \left\{ {}^{x}d^{***}_{2,4^1}\, q_2\, q_{4^1} + {}^{x}d^{***}_{2,4^2}\, q_2\, q_{4^2} \right\}$$
$$+ \left\{ \underline{{}^{x}d_{3^13^1}}\, (q_{3^1})^2 + \underline{{}^{x}d_{3^13^2}}\, q_{3^1}\, q_{3^2} + \underline{{}^{x}d_{3^23^2}}\, (q_{3^2})^2 \right\}$$
$$+ \left\{ \underline{\underline{{}^{x}d_{4^14^1}}}\, (q_{4^1})^2 + \underline{\underline{{}^{x}d_{4^14^2}}}\, q_{4^1}\, q_{4^2} + \underline{\underline{{}^{x}d_{4^24^2}}}\, (q_{4^2})^2 \right\}$$
$$+ \left\{ \underline{\underline{\underline{{}^{x}d_{3^14^1}}}}\, q_{3^1}\, q_{4^1} + \underline{\underline{\underline{{}^{x}d_{3^14^2}}}}\, q_{3^1}\, q_{4^2} \right.$$
$$\left. + \underline{\underline{\underline{{}^{x}d_{3^24^1}}}}\, q_{3^2}\, q_{4^1} + \underline{\underline{\underline{{}^{x}d_{3^24^2}}}}\, q_{3^2}\, q_{4^2} \right\}.$$

Le développement de M_y est semblable, les coefficients ${}^{\alpha}d$ étant remplacés par ${}^{\gamma}d$. D'autre part les $\overline{4\ {}^{\beta}d}$ peuvent s'exprimer en fonction de 2 d'entre eux ; de même pour les $4\ {}^{\beta}\overline{\overline{d}}$, les $4\ {}^{\beta}\overline{\overline{\overline{d}}}$, les $4\ {}^{\beta}d^*$, les $4\ {}^{\beta}d^{**}$, les $4\ {}^{\beta}d^{***}$, les $6\ {}^{\beta}\underline{d}$, les $6\ {}^{\beta}\underline{\underline{d}}$, les $8\ {}^{\beta}\underline{\underline{\underline{d}}}$.

D'où finalement, pour les développements des composantes de $\vec{M}$, limités au deuxième degré, 27 coefficients indépendants seulement.

2-7. **Toupies sphériques.** — Le développement des 3 composantes de $\vec{M}$ doit s'effectuer simultanément. Nous distinguerons pour chaque composante les monômes suivant leur degré par rapport aux coordonnées normales.

2-7-1. TERMES CONSTANTS : *Ils sont nuls.* La démonstration est *calquée* sur celle du paragraphe 2-6-1.

2-7-2. TERMES DU 1er DEGRÉ : Pour les monômes de la forme ${}^{\alpha}d_i\, q_i$ le coefficient ${}^{\alpha}d_i$ est nul sauf si $q_i = q_{t\theta}$ (coordonnée triplement dégénérée) et si la représentation Γ_t est équivalente à Γ_{xyz}. Dans ce cas, les 9 coefficients ${}^{\alpha}d_{t\theta}$ s'expriment en fonction de 4 d'entre eux. Ce résultat se déduit du théorème exposé à l'appendice II dans le cas particulier où $m = 3$ et où $\Gamma_u = \Gamma_{xyz}$.

2-7-3. TERMES DU 2e DEGRÉ : Parmi les monômes du deuxième degré ${}^{\alpha}d_{ij}\, q_i\, q_j$, les résultats sont les suivants, suivant les nombres de dimensions r et t des représentations Γ_i et Γ_j :

— Si r et t sont < 3, ${}^{\alpha}d_{ij}$ est nul.

— Si $r = 1$ et $t = 3$, ${}^{\alpha}d_{ij}$ est nul sauf si $\Gamma_i \times \Gamma_j$ est équivalent à Γ_{xyz}. Dans ce cas, les 9 coefficients ${}^{\alpha}d_{n,t\theta}$ s'expriment en fonction de 4 d'entre eux.

— Si $r = 2$ et $t = 3$; les 18 coefficients ${}^{\alpha}d_{ij}$ peuvent être soit tous nuls, soit s'exprimer en fonction de 8 ou de 4 d'entre eux. Le tableau IV résume les différents cas.

TABLEAU IV

COEFFICIENTS ${}^{\alpha}d_{s\sigma,t\theta}$ NON NULS POUR LES TOUPIES SPHÉRIQUES

GROUPES	Γ_s	Γ_t	NOMBRE DE COEFFICIENTS INDÉPENDANTS
$\mathcal{T}_d$ $\mathcal{O}$	E	F_1	4 sur 18
$\mathcal{O}_h$	E_g E_u E_g E_u	F_{1u} F_{1g} F_{2u} F_{2g}	4 sur 18
$\mathcal{T}$	E	F	8 sur 18
$\mathcal{T}_h$	E_u E_g	F_g F_u	8 sur 18

— Si $r = t = 3$, les 27 coefficients ${}^{\alpha}d_{ij}$ peuvent en général s'exprimer en fonction de 4 ou 8 d'entre eux.

Le tableau V résume les différents cas.

TABLEAU V

COEFFICIENTS ${}^{\alpha}d_{t\theta,t'\theta'}$ NON NULS POUR LES TOUPIES SPHÉRIQUES

GROUPES	Γ_t	$\Gamma_{t'}$	NOMBRE DE COEFFICIENTS INDÉPENDANTS
$\mathcal{T}_d$ $\mathcal{O}$	F_1 F_1 F_2	F_1 F_2 F_2	4 sur 27
$\mathcal{O}_h$	F_{1g} F_{1g} F_{1u} F_{2u}	F_{1u} F_{2u} F_{2g} F_{2g}	4 sur 27
$\mathcal{C}$	F_1	F_1	4 sur 27
$\mathcal{T}$	F	F	8 sur 27
$\mathcal{T}_h$	F_g	F_u	8 sur 27

Démonstrations :

C'est encore l'appendice III qui s'applique, avec $m = 3$.

Pour r et $t < 3$, les représentations irréductibles Γ_1, Γ_2 ... contenues dans $\Gamma_v = \Gamma_i \times \Gamma_j$ sont toutes de dimensions inférieures à 3. Donc $\delta_1 = \delta_2 = \ldots = 0$ et $\boldsymbol{d} = 0$.

Pour $r = 1$ et $t = 3$, l'équation (13) montre que $\boldsymbol{d} = 0$ sauf si $\Gamma_v = \Gamma_{xyz}$ auquel cas $\boldsymbol{d}$ est une matrice non nulle d'ordre 3, dont les 9 éléments s'expriment en fonction de quatre d'entre eux (cf. appendice I).

Pour $r = 2$ et $t = 3$, il s'agit de réduire Γ_v qui est de dimension 6. Or, on sait (9) que cette réduction contient toujours deux représentations tridimensionnelles Γ_1 et Γ_2. Si elles sont toutes deux distinctes de Γ_{xyz}, $\boldsymbol{d} = 0$. Si l'une d'elles, Γ_2 est équivalente à Γ_{xyz}, on a $\delta_1 = 0$ et $\delta_2 \neq 0$, avec 4 éléments indépendants ; donc $\boldsymbol{d}$ n'a que 4 éléments indépendants sur 18. Si $\Gamma_1 = \Gamma_2 = \Gamma_{xyz}$, δ_1 et δ_2 sont $\neq 0$ et chacune a 4 éléments indépendants, d'où 8 pour $\boldsymbol{d}$.

Pour $r = t = 3$, on trouve de même, selon le cas, 0, 1 ou 2 matrices d'ordre 3 non nuls, d'où, respectivement $\boldsymbol{d} = 0$, ou $\boldsymbol{d} \neq 0$ avec 4 coefficients indépendants, ou 8 coefficients indépendants.

APPENDICE I

Dans tout livre sur la théorie des représentations et en particulier dans [45] p. 75, on trouve la démonstration des théorèmes suivants :

Théorème I. — Une matrice qui commute avec toutes les matrices d'une représentation irréductible est une matrice constante, c'est-à-dire un multiple de la matrice unité.

Théorème II. — Soient Γ_1 et Γ_2 deux représentations irréductibles de dimensions respectives m et r d'un groupe fini, constituées par des matrices $\boldsymbol{G}_1(R_k)$ et $\boldsymbol{G}_2(R_k)$ respectivement.

S'il existe une matrice rectangle $\boldsymbol{d}$ à m lignes et r colonnes telle que, pour toute opération R_k du groupe de symétrie, on ait

$$\boldsymbol{d}.\boldsymbol{G}_2(R_k) = \boldsymbol{G}_1(R_k).\boldsymbol{d}$$

— soit $\boldsymbol{d}$ est une matrice nulle,

— soit $\boldsymbol{d}$ est carrée ($m = r$), non singulière et les représentations Γ_1 et Γ_2 sont équivalentes.

Conséquence. — Dans ce dernier cas $\boldsymbol{d}$ est une matrice assez particulière. En effet, dire que Γ_1 et Γ_2 sont équivalentes, c'est dire qu'il existe une matrice unitaire $\boldsymbol{U}$ telle que

$$\boldsymbol{U}^{-1}.\boldsymbol{G}_2(R_k).\boldsymbol{U} = \boldsymbol{G}_1(R_k)$$

soit, en remplaçant $\boldsymbol{G}_1(R_k)$ par cette valeur dans l'équation précédente :

$$\boldsymbol{d}.\boldsymbol{G}_2(R_k) = \boldsymbol{U}^{-1}.\boldsymbol{G}_2(R_k).\boldsymbol{U}.\boldsymbol{d}$$

d'où

$$\boldsymbol{U}.\boldsymbol{d}.\boldsymbol{G}_2(R_k) = \boldsymbol{G}_2(R_k).\boldsymbol{U}.\boldsymbol{d}$$

ce qui entraîne, d'après que le théorème I que $\boldsymbol{U}.\boldsymbol{d}$ est une matrice constante

$$\boldsymbol{U}.\boldsymbol{d} = \lambda \boldsymbol{I}$$

$$\boldsymbol{d} = \lambda \boldsymbol{U}^{-1}.$$

Comme $\boldsymbol{U}$ est unitaire, $\boldsymbol{d}$ satisfera à la propriété

$$\boldsymbol{d}.\boldsymbol{d}^\dagger = \lambda^2 \boldsymbol{I}.$$

Cette propriété entraîne, comme on le vérifiera aisément que les éléments de la matrice $\boldsymbol{d}$ peuvent s'exprimer en fonction d'un nombre réduit d'entre eux : 2 lorsque $\boldsymbol{d}$ est une matrice d'ordre 2, 4 lorsque $\boldsymbol{d}$ est une matrice d'ordre 3.

Cas des groupes abéliens. — Les groupes de symétrie abéliens, c'est-à-dire C_n, C_{nh} ($n = 3$ à 6) et S_4, S_6, S_8 ne possèdent que des représentations unidimensionnelles. Mais un certain nombre de ces représentations peuvent se grouper en paires ayant des caractères complexes conjugués. Les coordonnées normales correspondantes se groupent en paires z_{s^1} et z_{s^2} ayant même fréquence σ_s et complexes conjugués.

Il est classique de considérer au lieu de z_{s^1} et z_{s^2} les coordonnées normales réelles

$$q_{s^1} = \frac{1}{2}(z_{s^1} + z_{s^2}) \qquad q_{s^2} = \frac{1}{2i}(z_{s^1} - z_{s^2}).$$

Les matrices $\boldsymbol{G}(R_k)$ qui régissent le comportement de q_{s^1} et de q_{s^2} au cours des différentes opérations R_k du groupe forment une représentation que nous appellerons pseudo-irréductible :

— Le groupe des matrices $\boldsymbol{G}(R_k)$ est réductible au sens de la théorie mathématique des groupes.

— Tous les éléments des matrices $\boldsymbol{G}(R_k)$ sont réels.

— Aucune transformation de similitude du type $\boldsymbol{S}.\boldsymbol{G}(R_k).\boldsymbol{S}^{-1}$ ou $\boldsymbol{S}$ est une matrice réelle, ne permet de ramener les matrices $\boldsymbol{G}(R_k)$ dans leur ensemble à la forme réduite.

Ces représentations pseudo-irréductibles jouissent d'un certain nombre de propriétés des représentations irréductibles *à condition de ne faire intervenir que des matrices réelles.*

En particulier, les théorèmes précités s'appliquent encore. En effet, il suffit dans [45] p. 73 à 77 de supposer toutes les matrices réelles, de remplacer partout « adjointe » par « transposée », « hermétique » par « symétrique » et « unitaire » par « orthogonale ». La démonstration reste valable.

APPENDICE II

Considérons la matrice-colonne $\boldsymbol{M}$ à m lignes. Soit $\boldsymbol{G}_u(R_k)$ la matrice $m \times m$ définissant la transformation de $\boldsymbol{M}$ par l'opération de symétrie R_k.

L'ensemble des $\boldsymbol{G}_u(R_k)$ forme une représentation Γ_u que nous supposerons *irréductible.*

Nous cherchons à développer les éléments de $\boldsymbol{M}$, composantes du moment dipolaire $\vec{M}$, par rapport aux coordonnées normales et nous nous intéressons *en particulier aux termes du premier degré* en q_i de la forme ${}^\alpha d_i\, q_i$.

Comme nous l'avons vu au paragraphe 2-3 nous devons considérer les monômes associés à ${}^\alpha d_i\, q_i$ et les grouper en un polynôme P_α. Nous nous trouvons en présence de m polynômes P_α, formés eux-mêmes chacun de r monômes (r = degré de dégénérescence de q_i). Il y a donc mr coefficients d qu'on peut grouper en une matrice rectangulaire $\boldsymbol{d}$ à m lignes et r colonnes.

On peut écrire, sous forme matricielle :

$$\boldsymbol{P} = \boldsymbol{d}.\boldsymbol{Q}_i \tag{1}$$

où $\boldsymbol{P}$ et $\boldsymbol{Q}_i$ sont deux matrices colonnes constituées, l'une avec les m P_α, l'autre avec les r coordonnées associées à q_i.

Effectuons l'opération R_k sur la molécule : la matrice $\boldsymbol{M}$ et la matrice $\boldsymbol{P}$ doivent se transformer de la même façon

$$\boldsymbol{M} = \boldsymbol{G}_u(R_k).\boldsymbol{M}' \tag{2}$$

$$\boldsymbol{P} = \boldsymbol{G}_u(R_k).\boldsymbol{P}'. \tag{3}$$

Par ailleurs la matrice $\boldsymbol{Q}_i$ se transforme suivant

$$\boldsymbol{Q}_i = \boldsymbol{G}_i(R_k)\,\boldsymbol{Q}_i'. \tag{4}$$

La relation (1) doit encore être vérifiée après l'opération R_k. Or elle devient :

$$\boldsymbol{P}' = \boldsymbol{d}.\boldsymbol{Q}'_i. \qquad (5)$$

Remplaçons dans (1), $\boldsymbol{P}$ et $\boldsymbol{Q}_i$ par leurs valeurs tirées de (3), (4), (5) :

$$\boldsymbol{G}_u(R_k).\boldsymbol{d}.\boldsymbol{Q}'_i = \boldsymbol{d}.\boldsymbol{G}_i(R_k).\boldsymbol{Q}'_i. \qquad (6)$$

Cette relation doit être valable quelles que soient les valeurs des coordonnées normales, c'est-à-dire quel que soit $\boldsymbol{Q}'_i$ d'où :

$$\boldsymbol{G}_u(R_k).\boldsymbol{d} = \boldsymbol{d}.\boldsymbol{G}_i(R_k). \qquad (7)$$

Cette relation doit être valable quelle que soit l'opération R_k du groupe de symétrie. D'autre part, Γ_u et Γ_i constituent deux représentations irréductibles du groupe.

D'après le théorème démontré à l'appendice I, il en résulte que :

— soit $\boldsymbol{d} = 0$, c'est-à-dire que tous les coefficients d sont nuls ;

— soit Γ_u et Γ_i sont équivalents. Dans ce cas, on a $m = r$ et de plus $\boldsymbol{d}$ vérifie la relation

$$\boldsymbol{d}.\boldsymbol{d}^\dagger = \lambda^2 \boldsymbol{I}$$

ceci entraîne (cf. appendice I).

Lorsque $m = r = 2$, 2 relations entre les 4 éléments de $\boldsymbol{d}$.

Lorsque $m = r = 3$, 5 relations entre les 9 éléments de $\boldsymbol{d}$.

N. B. — Cette démonstration s'applique également au cas des représentations pseudo-irréductibles.

APPENDICE III

Considérons la matrice colonne $\boldsymbol{M}$ à m lignes. Comme dans l'appendice II nous supposerons irréductible ou pseudo-irréductible la représentation Γ_u formée par l'ensemble des matrices de transformation $\boldsymbol{G}_u(R_k)$ de la matrice $\boldsymbol{M}$.

Nous cherchons à développer les éléments de $\boldsymbol{M}$, qui sont les composantes du moment dipolaire, par rapport aux coordonnées normales et nous nous intéressons en particulier aux termes du deuxième degré, du type ${}^\alpha d_{ij}\, q_i\, q_j$ où q_i et q_j font partie des bases de représentations Γ_i et Γ_j respectivement, qui ont r et t dimensions.

Comme précédemment nous considérons les monômes associés à ${}^\alpha d_{ij}\, q_i\, q_j$ qui sont au nombre de $r.t$ et dont la somme constitue le polynôme P_α. Il y a m polynômes P_α qu'on peut grouper dans une matrice colonne $\boldsymbol{P}$ à m lignes. Il y aura donc mrt coefficients d qu'on peut grouper en une matrice $\boldsymbol{d}$ à m lignes et rt colonnes.

D'autre part, q_i et ses coordonnées associées constituent une matrice colonne $\boldsymbol{Q}_i$ à r lignes. De même q_j donne $\boldsymbol{Q}_j$ à t lignes. Tous les produits deux à deux d'un q_i et d'un q_j constituent les éléments d'une matrice colonne $\boldsymbol{V}$ à $r.t$ lignes et on a :

$$\boldsymbol{V} = \boldsymbol{Q}_i \times \boldsymbol{Q}_j. \qquad (1)$$

Lorsqu'on effectue une opération R_k sur la molécule, les règles de transformation de ces diverses matrices sont les suivantes :

$$\boldsymbol{M} = \boldsymbol{G}_u(R_k).\boldsymbol{M}' \qquad (2)$$

$$\boldsymbol{P} = \boldsymbol{G}_u(R_k).\boldsymbol{P}' \qquad (3)$$

$$\boldsymbol{Q}_i = \boldsymbol{G}_i(R_k).\boldsymbol{Q}'_i \qquad (4)$$

$$\boldsymbol{Q}_j = \boldsymbol{G}_j(R_k).\boldsymbol{Q}'_j \qquad (5)$$

$$\boldsymbol{V} = G_v(R_k).\boldsymbol{V}' \qquad (6)$$

avec la relation supplémentaire

$$\boldsymbol{G}_v(R_k) = \boldsymbol{G}_i(R_k) \times \boldsymbol{G}_j(R_k) \qquad (7)$$

ou encore, pour les représentations

$$\Gamma_v = \Gamma_i \times \Gamma_j. \qquad (8)$$

D'autre part, les relations suivantes ([9]) résultent de la définition de $\boldsymbol{d}$.

$$\boldsymbol{P} = \boldsymbol{d}.\boldsymbol{V} \qquad (9)$$

$$\boldsymbol{P}' = \boldsymbol{d}.\boldsymbol{V}'. \qquad (10)$$

Dans (9), nous pouvons remplacer $\boldsymbol{P}$ et $\boldsymbol{V}$ par leurs valeurs tirées de (3) et (6).

$$\boldsymbol{G}_u(R_k).\boldsymbol{P}' = \boldsymbol{d}.\boldsymbol{G}_v(R_k):\boldsymbol{V}' \qquad (11)$$

soit, en utilisant (10) :

$$\boldsymbol{G}_u(R_k).\boldsymbol{d}.\boldsymbol{V}' = \boldsymbol{d}.\boldsymbol{G}_v(R_k).\boldsymbol{V}'. \qquad (12)$$

Cette relation doit être valable quelles que soient les valeurs prises par les q_i et q_j, donc quel que soit $\boldsymbol{V}'$, d'où :

$$\boldsymbol{G}_u(R_k).\boldsymbol{d} = \boldsymbol{d}.\boldsymbol{G}_v(R_k). \qquad (13)$$

Nous aboutissons donc à une relation comparable à celle de l'appendice I, avec la différence importante que Γ_v n'est en général ni irréductible, ni pseudo-irréductible. Mais nous connaissons les formes que réduites peut prendre Γ_v ([10]) :

— Si $r = 1$, Γ_v est irréductible et de dimension t.

— Si $r = t = 2$, Γ_v est réductible ([11]), soit en

([9]) A titre d'exemple, si $m = r = t = 2$, la relation (9) exprime les deux relations suivantes :

$$P_x = {}^x d_{1^1 2^1}\, q_{1^1}\, q_{2^1} + {}^x d_{1^2 2^1}\, q_{1^2}\, q_{2^1} + {}^x d_{1^1 2^2}\, q_{1^1}\, q_{2^2} + {}^x d_{1^2 2^2}\, q_{1^1}\ {}_{2^2}$$

$$P_y = {}^y d_{1^1 2^1}\, q_{1^1}\, q_{2^1} + {}^y d_{1^1 2^1}\, q_{1^2}\, q_{2^1} + {}^y d_{1^1 2^2}\, q_{1^1}\, q_{2^2} + {}^y d_{1^2 2^2}\, q_{1^2}\, q_{2^2}.$$

([10]) Cf. à ce sujet [43], p. 331.

([11]) Ces considérations et celles qui suivent s'appliquent également aux représentations pseudo-irréductibles. On notera toutefois qu'on ne peut faire le produit direct de deux représentations pseudo-réductibles qu'en utilisant les caractères des représentations unidimensionnelles dont elles sont formées. Par exemple, pour $\mathcal{C}_6$, le produit direct $E_1 \times E_2 = 2B + E_1$ s'obtient en formant les 4 produits directs $E_{1\alpha} \times E_{2\alpha} = B$, $E_{1\alpha} \times E_{2\beta} = E_{1\beta}$, $E_{1\beta} \times E_{2\alpha} = E_{1\alpha}$, $E_{1\beta} \times E_{2\beta} = B$, en appelant α et β les deux représentations unidimensionnelles composant la représentation pseudo-irréductible.

quatre représentations unidimensionnelles, soit en une représentation bidimensionnelle et deux unidimensionnelles.

— Si $r = 2$, $t = 3$, Γ_v est réductible en deux représentations tridimensionnelles.

— Si $r = t = 3$, est réductible en quatre représentations A, E, F et F (pour $\mathfrak{I}$, $\mathfrak{I}_d$, $\mathfrak{I}_h$, $\mathfrak{O}$ et $\mathfrak{O}_h$) ou fait intervenir des représentations G et H (pour $\mathfrak{C}$).

On obtient la forme entièrement réduite des matrices $G_v(R_k)$ en effectuant un changement de coordonnées sur les coordonnées normales, changement de coordonnées représenté par l'action d'une matrice orthogonale U sur $G_v(R_k)$.

$$G_v(R_k) = U . H_v(R_k) . U^{-1} \tag{14}$$

En même temps, la matrice $G_u(R_k)$ est transpar une autre matrice orthogonale W

$$G_u(R_k) = W . H_u(R_k) . W^{-1}. \tag{15}$$

Ceci entraîne, pour (13)

$$W . H_u(R_k) . W^{-1} . d = d . U . H_v(R_k) . H^{-1} \tag{16}$$

ou encore :

$$H_u(R_k) . W^{-1} . d . H = W^{-1} . d . U . H_v(R_k) \tag{17}$$

qui s'écrit, en posant

$$\delta = W^{-1} . d . U \tag{18}$$

$$H_u(R_k) . \delta = \delta . H_v(R_k) \tag{19}$$

relation analogue à (13), avec la différence que $H_v(R_k)$ est sous une forme entièrement réduite.

Supposons que l'on ait :

$$\Gamma_v = \Gamma_1 + \Gamma_2 \ldots \tag{20}$$

ce qui entraîne, pour le nombre de dimensions de ces représentations :

$$rt = p_1 + p_2 + \ldots \tag{21}$$

Dans ce cas, les matrices $H_v(R_k)$ se mettent sous la forme d'une » *somme directe* » de matrices carrées $H_1(R_k)$, $H_2(R_k)$ ... de dimensions p_1, p_2 ...

Décomposons la matrice rectangle δ, qui a m lignes et rt colonnes en plusieurs matrices rectangles δ_1, δ_2 ... à m lignes et respectivement p_1, p_2 ... colonnes. Dans ces conditions (19) peut s'écrire :

$$\left\{ \begin{array}{l} H_u(R_k) . \delta_1 = \delta_1 . H_1(R_k) \\ H_u(R_k) . \delta_2 = \delta_2 . H_2(R_k) \\ \ldots\ldots\ldots\ldots\ldots\ldots \end{array} \right. \tag{22}$$

Pour ces équations (22), le théorème de l'appendice I s'applique parfaitement car Γ_1, Γ_2 ..., comme Γ_u sont des représentations irréductibles ou pseudo-irréductibles.

Il en résulte que :

1° soit Γ_u et Γ_1 sont équivalentes, soit $\delta_1 = 0$;

2° soit Γ_u et Γ_2 sont équivalentes, soit $\delta_2 = 0$.

. . . .

Les conclusions à tirer de ces résultats varient suivant les cas particuliers. On trouve en général que parmi les matrices δ_1, δ_2, δ_3 ..., certaines sont nulles, d'autres ont des éléments non indépendants (voir appendice I).

Par suite δ a des éléments qui s'expriment en fonction d'un petit nombre ν d'éléments indépendants. Comme d est reliée à δ par la relation (18), il en résulte que les mrt éléments de d peuvent s'exprimer en fonction de ν d'entre eux.

Conclusion. — L'ensemble des coefficients ${}^{\alpha}d_{ij}$ des monômes de la forme ${}^{\alpha}d_{ij} . q_i . q_j$ du développement des composantes de $\overrightarrow{M}$ forme une matrice d.

Cette matrice d a tous ses éléments nuls si le produit direct $\Gamma_i \times \Gamma_j$ ne contient pas de représentation équivalente à Γ_u.

Au contraire, si $\Gamma_i \times \Gamma_j$ contient des représentations équivalentes à Γ_u, les $m . r . t$ coefficients ${}^{\alpha}_{\cdot}d_{ij}$ ne sont pas tous nuls, mais peuvent s'exprimer en fonctions de certains d'entre eux.

APPENDICE IV

Théorème. — Soit 3 représentations Γ_s, $\Gamma_{s'}$ et Γ_z de dimensions 2, 2 et 1 respectivement. Si $\Gamma_s \times \Gamma_z = \Gamma_{s'}$, la réduction du produit direct $\Gamma_s \times \Gamma_{s'}$ contient le type de symétrie de Γ_z et réciproquement.

Démonstration. — 1° Soit γ_s^k, $\gamma_{s'}^k$ et γ_z^k les caractères des matrices représentant R_k dans les représentations Γ_s, $\Gamma_{s'}$ et Γ_z. Si $\Gamma_s \times \Gamma_z = \Gamma_{s'}$, on a

$$\gamma_s^k . \gamma_z^k = \gamma_{s'}^k. \tag{1}$$

Dans ces conditions, considérons le produit direct $\Gamma_s \times \Gamma_{s'}$ dont les caractères sont $\gamma_s^k . \gamma_s^{k'}$. On trouve le nombre n de fois que Γ_z est contenue dans ce produit direct par la relation bien connue [12].

$$n = \frac{1}{g} \sum_k (\gamma_s^k . \gamma_{s'}^k) . \gamma_z^k \tag{2}$$

(g = ordre du groupe).

Cette relation s'écrit encore, d'après (1)

$$n = \frac{1}{g} \sum_k (\gamma_{s'})^2 \tag{3}$$

donc

$n > 0$ C. Q. F. D.

[12] Cf. à ce sujet tout ouvrage sur la théorie des représentations et en particulier [43], p. 314.

2° Réciproquement, supposons que la relation (2) soit vérifiée, avec $n > 0$. Elle peut s'écrire encore :

$$n = \frac{1}{g} \sum_k \gamma_{s'}^k \cdot \gamma_{s''}^k \tag{4}$$

en appelant $\Gamma_{s''}$ la représentation irréductible produit direct de Γ_s par Γ_z. Or, entre deux représentations irréductibles on a la relation

$$\frac{1}{g} \cdot \sum_k \gamma_{s'}^k \cdot \gamma_{s''}^k = \delta_{s's''} \cdot n$$

($\delta_{s's''}$ = symbole de Kronecker).

Il en résulte que $\Gamma_{s'} = \Gamma_{s''}$ c. q. f. d.

Cas des représentations pseudo-irréductibles (cf. appendice I). — Le théorème s'applique encore.

En effet, supposons Γ_s et $\Gamma_{s'}$ pseudo-irréductibles. On a : $\Gamma_s = \Gamma_{s\alpha} + \Gamma_{s\beta}$ et $\Gamma_{s'} = \Gamma_{s'\alpha'} + \Gamma_{s'\beta'}$.

1° Si $\Gamma_s \times \Gamma_z = \Gamma_{s'}$, c'est qu'on a simultanément

$$\begin{cases} \Gamma_{s\alpha} \times \Gamma_z = \Gamma_{s'\alpha'} \\ \Gamma_{s\beta} \times \Gamma_z = \Gamma_{s'\beta'} \end{cases} \tag{5}$$

ce qui entraîne immédiatement, les représentations étant unidimensionnelles :

$$\begin{cases} \Gamma_{s\alpha} \times \Gamma_{s'\alpha'} = \Gamma_z \\ \Gamma_{s\beta} \times \Gamma_{s'\beta'} = \Gamma_z. \end{cases} \tag{6}$$

Donc le produit direct $\Gamma_s \times \Gamma_{s'}$ qui est réductible en 4 représentations unidimensionnelles : $\Gamma_{s\alpha} \times \Gamma_{s'\alpha'}$, $\Gamma_{s\beta} \times \Gamma_{s'\beta'}$, $\Gamma_{s\alpha} \times \Gamma_{s'\beta'}$, $\Gamma_{s\beta} \times \Gamma_{s'\alpha'}$, contient au moins deux fois la représentation Γ_z.

2° Réciproquement, si $\Gamma_s \times \Gamma_{s'}$ contient une fois Γ_z, c'est qu'un des quatre produits directs précités, par exemple $\Gamma_{s\alpha} \times \Gamma_{s'\alpha'}$ donne Γ_z. Les caractères de Γ_z étant réels, il en résulte qu'on a également $\Gamma_{s\beta} \times \Gamma_{s'\beta'} = \Gamma_z$ et que par suite (5) est vérifié. Donc $\Gamma_s \times \Gamma_z = \Gamma_{s'}$.

Manuscrit reçu le 16 décembre 1960

BIBLIOGRAPHIE

[44] HERZBERG (G.), Molecular Spectra and Molecular Structure II, 5e ed., D. Van Nostrand Company, New York, 1951.

[45] WIGNER (E. P.), Group Theory and its application to the quantum mechanics of atomic spectra, Academic Press, New York, 1959.

CORRÉLATIONS ANGULAIRES DANS LE ^{223}Ra (Ac X)

Par F. BRAGANÇA GIL (*), R. FOUCHER et G. Y. PETIT,
Institut du Radium, Laboratoire de Physique Nucléaire, Orsay.

Résumé. — La détermination expérimentale de la corrélation angulaire entre les 2 rayonnements γ de 236 et 50 keV du ^{223}Ra a été effectuée avec des sources liquides de viscosités variées ou solides. On en déduit que le γ de 236 keV est de nature $E_1 + M_2$ avec $3{,}6 \pm 2{,}4 \cdot 10^{-4}$ (M_2), que le moment quadrupolaire électrique du niveau 3/2 + de 50 keV est de l'ordre de 0,28 fois celui du niveau 2 + du ^{224}Ra. Les valeurs des spins des niveaux de 0, 50, 286 keV sont analysées, l'importance de la déformation axiale quadrupolaire du ^{223}Ra est discutée.

Abstract. — Angular correlations between γ rays of 236 and 50 keV of ^{223}Ra are measured in solid sources and liquid sources of various viscosities. The 236 keV γ ray is $E_1 + M_2$ with $3.6 \pm 2.4 \times 10^{-4}$ M_2 ; $Q_{3/2}$ [50 keV excited state] $\approx 0{,}28\ Q_{2+}$ [84 keV excited state of ^{224}Ra]. Values of the spins of 0, 50, 286 keV excited states are analysed, and the value of axial quadrupolar deformation in ^{223}Ra is discussed.

La désintégration α du ^{227}Th conduit à de nombreux niveaux excités du ^{223}Ra, étudiés en spectroscopie α et e$^-$ par M. Frilley, S. Rosenblum, M. Valadares, G. Boussières [1] et par R. Pilger [2]. Une cascade de deux rayonnements peu convertis, émerge du spectre complexe des transitions γ. L'un a pour énergie 50 keV et a une nature dipolaire électrique qui semble bien établie [3], l'autre a pour énergie 236 keV, ce qui place ces transitions entre les niveaux excités de 286 keV, 50 keV et le niveau fondamental du ^{223}Ra (*fig.* 1).

Nous avons admis que le rayonnement de 236 keV précédait le rayonnement de 50 keV dans la cascade de désintégration, compte tenu des résultats de mesure de période du niveau intermédiaire entre les deux rayonnements [4] et du fait que le niveau de 50 keV se retrouve par désintégration β à partir du Fr 223 [5]. D'autre part, il semble bien que l'hypothèse d'une cascade de désintégration par l'intermédiaire d'un niveau de 234,9 keV puisse être éliminée puisque des expériences de spectrométrie cristalline ne permettent de mettre en évidence qu'un seul rayonnement γ aux alentours de 50 keV [6].

Pour confirmer ou déterminer la nature de ces rayonnements et les moments angulaires totaux des différents niveaux de la cascade de désintégrations nous avons étudié les corrélations angulaires entre ces deux rayonnements, d'une part en source solide et d'autre part en sources liquides de différentes viscosités afin de connaître les variations de l'anisotropie des corrélations angulaires.

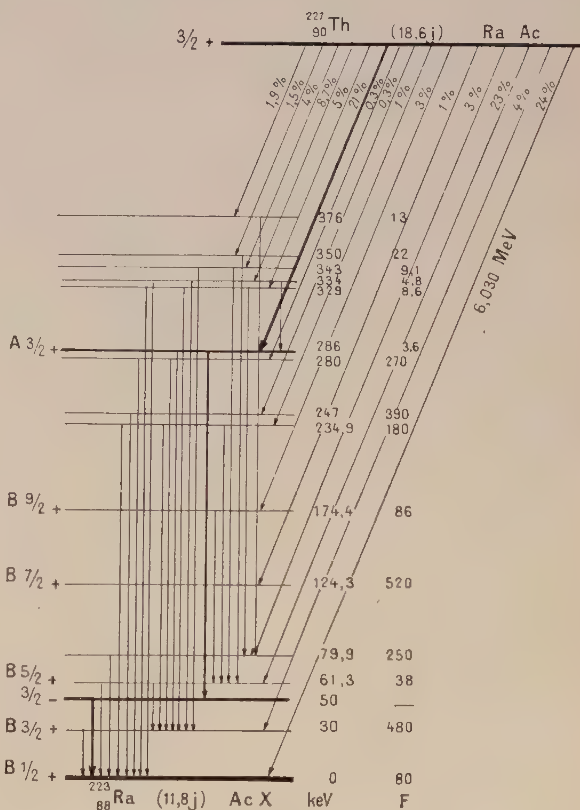


FIG. 1.

I. **Appareillage.** — Notre appareillage est constitué par deux ensembles détecteurs à scintillations : cristal d'INa(Tl) de 2,5 cm de diamètre sur 2,5 cm de hauteur, et photomultiplicateur (E. M. I. 9514). Les axes des deux compteurs sont horizontaux et l'un d'entre eux peut se déplacer dans le plan horizontal autour d'un axe vertical passant par la source radioactive.

Le schéma de principe de cet appareillage est

(*) Détaché du Conseil des Recherches Scientifiques d'Outre-Mer, Portugal.

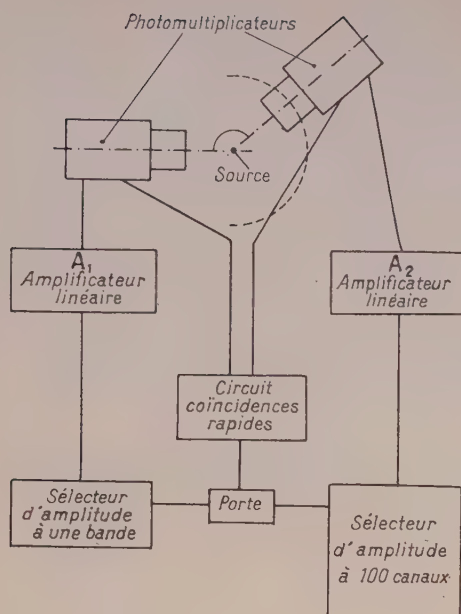


FIG. 2. — Schéma de principe de l'appareillage.

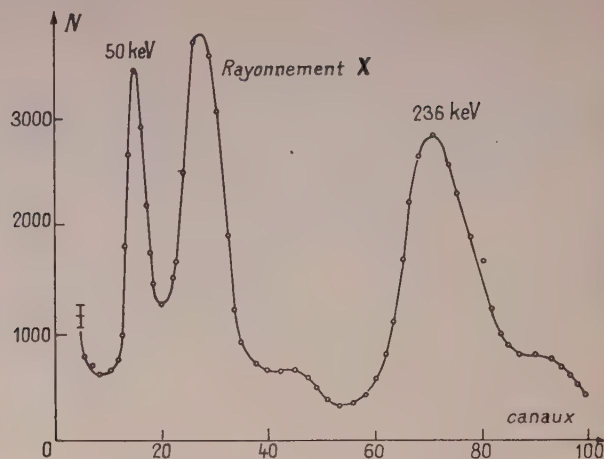


FIG. 3. — Spectre γ du Ra Ac (^{227}Th).

donné figure 2. Le sélecteur d'amplitude à 100 canaux enregistre la hauteur des impulsions provenant de l'amplificateur A2 lorsque simultanément l'amplificateur A1 fournit une impulsion dont l'amplitude se trouve entre les deux seuils du sélecteur à une bande. Dans nos expériences ces deux seuils sont fixés de façon à ne laisser passer que les impulsions correspondant au rayonnement γ de 50 keV. Nous enregistrons ainsi sur le sélecteur d'amplitude à 100 canaux les rayonnements en coïncidence avec ce rayonnement de 50 keV.

SOURCES. — Les sources sont préparées par séparation au T. T. A. à partir d'une solution d'actinium, puis diluées dans de l'eau, ou mélangées à un volume donné de solution glycérique en présence de thorium naturel. Elles sont contenues dans un petit tube de plexiglass de 5 mm de diamètre intérieur et 10 mm de hauteur ; ce tube vient se placer dans un logement qui en assure le centrage.

Nous avons toujours travaillé dans les 48 heures qui suivaient la séparation afin de ne pas être gênés par les dérivés. La figure 3 donne l'allure du spectre γ obtenu directement avec de telles sources et nos compteurs.

Nous avons enfin étalonné nos sources liquides au point de vue viscosité à l'aide d'un viscosimètre de Ubbelhode. Les solutions de viscosités différentes étant préparées à l'avance nous prenions soin d'ajouter avant chaque étalonnage une quantité d'eau équivalente à la quantité de solution diluée de chlorure de thorium radioactif que nous ajoutions. La figure 4 donne les viscosités relatives en fonction des proportions de glycérine.

% glycérine	0	60	80	88	100
η	15	91	240	606	1 091

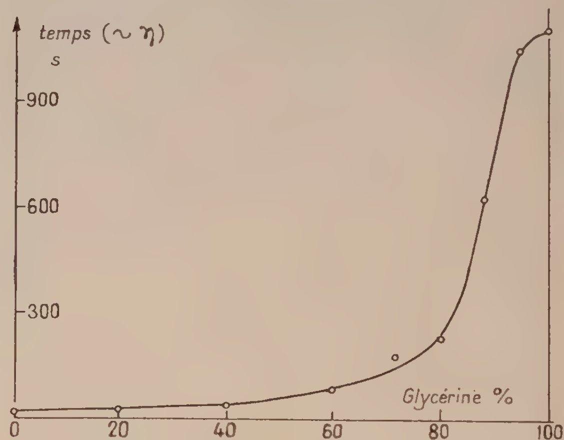


FIG. 4. — Viscosité en fonction du pourcentage de glycérine.

CORRÉLATIONS ANGULAIRES. — La direction d'émission du rayonnement de 50 keV est prise comme origine des angles et nous avons détecté les rayonnements γ en coïncidence avec les angles d'émission relatifs θ_i tels que :

$$|\cos \theta_i| = 0 ; 0{,}2 ; 0{,}4 ; 0{,}6 ; 0{,}8 ; 1.$$

Le rayonnement γ de 50 keV étant de nature dipolaire électrique, la fonction angulaire théorique est de la forme

$$W(\cos\theta) = 1 + A_2 P_2(\cos\theta).$$

CORRECTIONS. — On doit tenir compte de deux facteurs de corrections : d'une part des coïnci-

dences fortuites, et d'autre part des corrections géométriques dues à ce que détecteurs et source ne sont pas ponctuels [3]. Ces dernières, simples dans le cas d'une symétrie cylindrique, reviennent à multiplier par des facteurs J_ν/J_0 les coefficients de polynôme de Legendre d'ordre ν de la fonction de corrélations angulaires théoriques. Pratiquement nous pouvons utiliser ce type de correction, ce qui conduit à : $J_2/J_0 = 0{,}96$.

II. **Résultats.** — A) Source solide et source liquide diluée dans l'eau. — En source solide nous obtenons expérimentalement une courbe de la forme : $W(\cos\theta) = 1 + A_2G_2P_2(\cos\theta)$.

G_2 étant le facteur d'atténuation introduit par Abragam et Pound [7] pour tenir compte du couplage entre le moment quadrupolaire électrique et les champs électriques dus à la structure cristalline de la source.

$$A_2\ G_2 = -0{,}130 \pm 0{,}007.$$

Un tel couplage est vraisemblable étant donnée la valeur de la vie moyenne du niveau de 50 keV (9×10^{-10} s) [8] et l'importance probable du moment quadrupolaire (pour l'isotope voisin, ^{224}Ra le moment quadrupolaire intrinsèque est déjà important $Q_0 = 6{,}2$ barns). En source diluée dans l'eau, nous obtenons expérimentalement

$$A_2\ G_2 = -0{,}185 \pm 0{,}005 \quad (\textit{fig } 5).$$

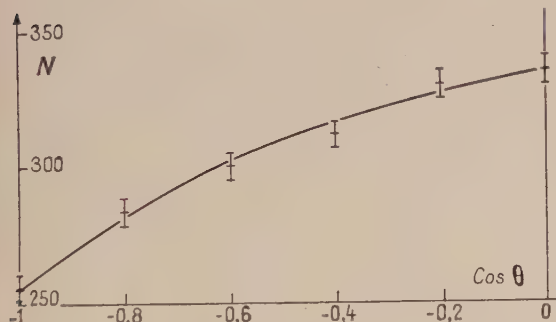


Fig. 5. — Corrélation angulaire 236 keV-50 keV. Solution aqueuse : $A_2\ G_2 = -0{,}185$.

Les valeurs de spins compatibles avec ces corrélations angulaires seront donc telles que

$$|A_2| \geqslant 0{,}180$$

ce que nous rencontrons pour les cascades de spins

3/2 .. 3/2 .. 1/2	$A_2 = -0{,}200$
1/2 .. 3/2 .. 3/2	$A_2 = -0{,}200$
1/2 .. 5/2 .. 3/2	$A_2 = -0{,}200$.

Il existe une petite différence entre la valeur théorique $A_2 = -0{,}200$ et la valeur expérimentale trouvée en solution aqueuse. Cette différence peut provenir de la valeur du facteur G_2 qui n'est théoriquement égal à 1 que pour une viscosité nulle. Nous avons donc cherché à extrapoler la courbe représentant la variation de A_2G_2 en fonction de la viscosité η.

B) Sources liquides a différentes viscosités. — Pour chaque mélange de viscosité donnée, la corrélation angulaire est déterminée par 6 angles comme précédemment. Les résultats peuvent être résumés par le tableau suivant :

Viscosité relative	15	91	240	606	1 091
$\lvert A_2\ G_2\rvert$	0,185	0,178	0,166	0,154	0,158

Extrapolée à viscosité nulle la courbe $A_2G_2(\eta)$

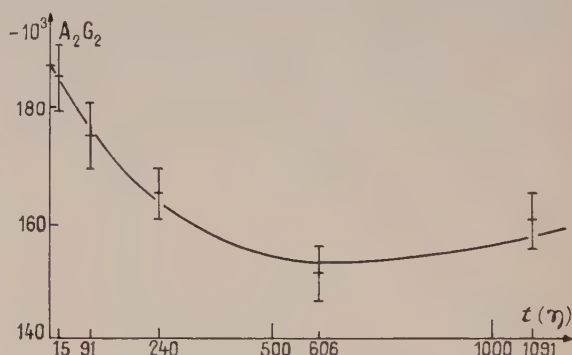


Fig. 6. — $A_2\ G_2$ fonction de η.

(*fig.* 6) permet d'avoir le facteur A_2 non perturbé puisqu'alors $G_2 = 1$

$$A_2 = -0{,}187 \pm 0{,}006.$$

C) Coefficient de conversion du rayonnement γ de 236 keV. — Le spectre obtenu en coïncidence avec le rayonnement de 50 keV (*fig.* 7),

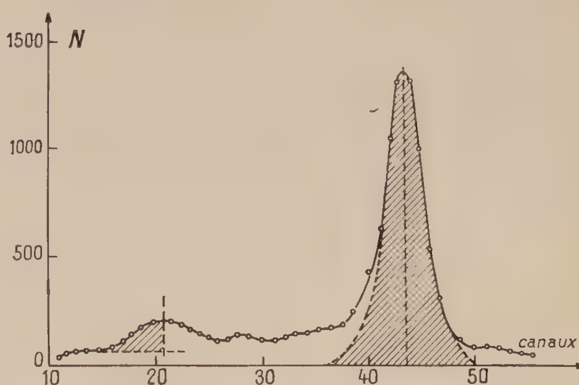


Fig. 7. — Spectre en coïncidence avec la raie de 50 keV.

nous montre deux pics photoélectriques : l'un correspondant au rayonnement de 236 keV et l'autre au rayonnement X_K. La comparaison entre la sur-

face de ces deux pics, compte tenu de la différence d'efficacité du cristal pour les deux rayonnements d'énergie différente, nous permet de mesurer le coefficient de conversion du rayonnement de 236 keV. Nous observons en outre que la corrélation angulaire 50 keV, rayonnement X est isotrope. Le coefficient de conversion α_k est $0{,}06 \pm 0{,}01$.

III. Comparaison entre les courbes expérimentales de corrélations angulaires et les fonctions théoriques. — A) SOURCE LIQUIDE DILUÉE DANS L'EAU. — Nous avons vu que pour une source liquide diluée dans l'eau il existe une légère différence entre la courbe expérimentale et la courbe tracée à partir de la fonction de corrélation angulaire théorique. Cela nous permet de dire, en tenant compte du résultat à viscosité nulle, que l'atténuation telle quelle est proposée par Abragam et Pound n'est pas suffisante à elle seule pour expliquer le désaccord entre les résultats expérimentaux et les prévisions théoriques.

B) SOURCE LIQUIDE DE VISCOSITÉ VARIABLE [7], [9], [10]. — La forme de la courbe de corrélation angulaire ne change pas, seule la valeur de l'anisotropie varie avec la viscosité de la source. Elle décroît de $-0{,}185$ à $-0{,}154$ lorsque la viscosité croît à partir de celle de l'eau jusqu'à 40 fois celle de l'eau. Elle est ensuite stationnaire, ou peut être même croît jusqu'à $-0{,}160$ pour $\eta = 73\ \eta_{\text{eau}}$.

La vie moyenne τ_n du niveau intermédiaire de la cascade de désintégration est petite par rapport au temps de résolution du circuit de coïncidence, les prévisions d'Abragam et Pound [7] nous permettent alors de dire que : l'inverse du facteur d'atténuation G_2 doit augmenter linéairement en fonction de la viscosité, jusqu'à la viscosité maximum correspondant à la valeur maximum admissible du temps de corrélation dans le liquide τ_c. Ce temps de corrélation τ_c est le temps pendant lequel la configuration locale dans le liquide, peut être considéré comme constante. Il est proportionnel à la viscosité η. Au delà de cette valeur les formules théoriques ne sont plus valables.

$$G_2 = 1/(1 + \lambda_2 \tau_n)$$

$$\lambda_2 = \frac{3}{80}\left(\frac{eQ}{\hbar}\right)^2 \left\langle \left(\frac{\partial E_z}{\partial Z}\right)^2 \right\rangle_{\text{moy}} \tau_c \frac{6[4I(I+1)-7]}{I^2(2I-1)^2}$$

$$\tau_c \# 4\pi a^3\, \eta/3kT$$

a, rayon moléculaire. Les conditions de validité pourront se formuler

$$\tau_n \gg \tau_c \text{ et } \tau_0 \gg \tau_n$$

τ_0 : temps de résolution du système de coïncidences.

On constate que la courbe expérimentale (*fig.* 8) est une droite, jusqu'à ce que la viscosité dépasse

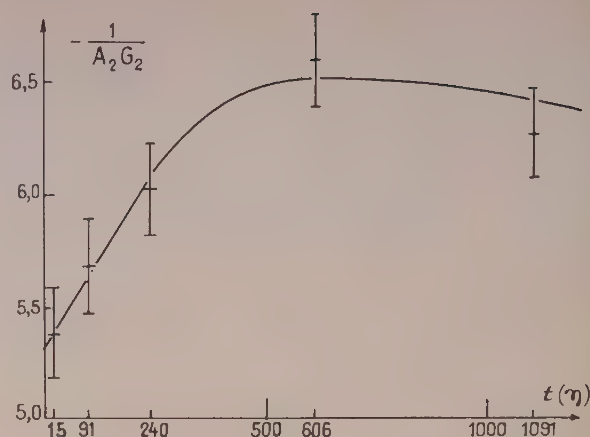


FIG. 8. — $\frac{1}{A_2\,G_2}$ fonction de η.

une certaine valeur $\eta_{\max} \# 20\ \eta_{\text{eau}}$ pour laquelle $A_2G_2(\eta_{\max}) = -0{,}152$. Ensuite, au fur et à mesure que la viscosité croît, les mouvements des molécules du mélange se ralentissent et on se rapproche du cas des corrélations angulaires en source solide. Si la vie moyenne de l'état intermédiaire était suffisamment longue, l'anisotropie pourrait presque s'annuler avant de redevenir voisine de celle, due au « cœur dur » dans le cas des sources polycristallines. Dans notre cas, la vie moyenne est telle qu'à la limite de validité des formules l'anisotropie est encore très appréciable et dans ces conditions il est normal que $A_2G_2(\eta)$ décroisse tout en restant supérieur à une valeur limite. En fait $A_2G_2(\eta)$ croît peut-être à partir d'une certaine viscosité correspondant à un pourcentage de glycérine dans l'eau supérieur à 80 %. Ceci pourrait être dû à une variation de l'environnement des atomes de radium. La courbe $\eta = f$ (% glycérine) montre en effet que la viscosité croît justement très rapidement à partir des pourcentages de glycérine dans l'eau de l'ordre de 80 %.

Ainsi, qualitativement, la courbe $A_2G_2(\eta)$ s'explique bien par la théorie des corrélations angulaires perturbées par des couplages quadrupolaires électriques dépendant du temps dans les sources liquides.

On peut tirer des renseignements semi-quantitatifs de la courbe $G_2(\eta)$ ou plutôt de son inverse, dont la portion rectiligne a pour équation : $1/G_2(\eta) = 1 + \lambda\tau_n$.

Nous avons $\tau_n = 9 \times 10^{-10}$ et la viscosité de l'eau est 10^{-2} poises. La valeur du paramètre λ sera 9×10^7 poises^{-1} s^{-1}. La valeur généralement admise pour le temps de corrélation τ_c de l'eau est $\tau_c \# 10^{-11}$ s. Nous aurons ainsi

$$4\pi a^3/3kT = 10^{-9} \text{ et } a \# 5 \times 10^{-8}$$

soit un rayon moléculaire 3 fois plus grand que

celui trouvé par R. M. Steffen [9] dans le cas du chlorure d'indium dans une solution glycérique.

$$\lambda = (3/80)\,(2\pi\Delta\nu)^2 f(I)\,\tau_c$$

et pour $I = 3/2$ nous aurons $\Delta\nu = 10^9$ Hz ; le choix de $I = 5/2$ conduirait à $\Delta\nu = 3 \times 10^9$ Hz ; la valeur de τ_c maximum étant 2×10^{-10} les conditions de validité des formules sont bien remplies.

IV. Discussion des résultats expérimentaux.

— A) Multipolarité du rayonnement γ de 236 keV. — Les tables de Rose [11] donnent comme coefficient de conversion interne k théorique pour un rayonnement γ de 236 keV

$$\alpha(E_1) = 5 \times 10^{-2} \qquad \alpha(E_2) = 1{,}15 \times 10^{-1}$$
$$\beta(M_2) = 4{,}4 \qquad \beta(M_1 = 1{,}3.$$

Le coefficient de conversion interne trouvé expérimentalement est :

$$\alpha_K = 0{,}06.$$

La corrélation angulaire entre les rayonnements de 50 keV et 236 keV ainsi que le coefficient de conversion de ce dernier sont difficilement compatibles avec une autre multipolarité que $E_1 + M_2$. Le pourcentage de transition M_2 se déduit à partir du facteur d'anisotropie A_2 pour $\eta = 0$

$$A_2 = (-0{,}200 + 0{,}776\,\delta)/(1 + \delta^2)$$

δ^2 étant le rapport des intensités des transitions E_1 et M_2

$$A_2 = -0{,}187 \pm 0{,}006 \qquad \text{d'où}$$

$$\delta^2 = I_\gamma(M_2)/I_\gamma(E_1) = 3{,}4\ (\pm 2{,}6) \times 10^{-4}.$$

B) Spins des niveaux de 286, 50 et 0 keV. — 1° *Spin du niveau de 286 keV.* — La corrélation angulaire $\gamma - \gamma$ en source liquide de viscosité variable ne laisse que deux possibilités 1/2 ou 3/2 compte tenu de la nature $E_1 + M_2$ du rayonnement γ de 236 keV. Les valeurs 7/2 ou 9/2 qu'on déduirait des valeurs du spin du niveau fondamental du ^{227}Th proposées par Ryshanov [12] semblent bien exclues.

2° *Spin du niveau de 50 keV.* — La corrélation angulaire $\gamma - \gamma$, étant donné les caractères $E_1 + M_2$ du γ (236 keV) et E_1 du γ (50 keV) ne laisse comme possibilité que la valeur 3/2. Les perturbations de la corrélation angulaire sont également en faveur de cette valeur.

3° *Spin du niveau fondamental.* — *a*) D'après la corrélation angulaire il existe deux possibilités : 3/2 ou 1/2.

b) L'étude des niveaux au point de vue bande de rotation semble bien en faveur d'une bande $K = 1/2$ avec $I_0 = 1/2$ [2], [13] (§ D).

C) Probabilité d'émission et facteurs de conversion interne des rayonnements γ émis a partir du niveau de 286 keV. — Au moyen des intensités relatives des transitions γ de 286 keV, 256 keV et 236 keV, de la valeur de la vie moyenne du niveau $9 \pm 1 \times 10^{-10}$ s [4] du pourcentage $\delta^2 = 3{,}4 \pm 2{,}6 \times 10^{-4}$ de transition M_2 dans le rayonnement de 236 keV et en utilisant les coefficients de conversion interne théorique, nous obtenons les probabilités de transition partielles :

$$P_{\gamma E_1}\ (236\ \text{keV}) = 5{,}5 \times 10^8\ \text{s}^{-1}$$
$$P_{\gamma M_2}\ (236\ \text{keV}) = 1{,}6\ (\pm 1{,}1) \times 10^5\ \text{s}^{-1}$$
$$P_\gamma\ (256\ \text{keV}) = 3{,}1 \times 10^8\ \text{s}^{-1}$$
$$P_\gamma\ (286\ \text{keV}) = 4{,}4 \times 10^7\ \text{s}^{-1}.$$

Si on admet de plus avec Pilger, que le rayonnement γ de 256 keV est de nature E_2 et celui de 286 keV de nature M_1, on obtient, rapportées aux prévisions du modèle de la particule indépendante :

E_γ	Nature	F proton indépendant	F neutron indépendant
236	E_1	$7{,}7 \times 10^{-6}$	$1{,}9 \times 10^{-5}$
236	M_2	(3×10^{-2})	(7×10^{-2})
256	E_2	2	450
286	M_1	$3{,}3 \times 10^{-5}$	$1{,}2 \times 10^{-4}$

Les prévisions du modèle des couches pour les transitions dues à un neutron impair étant plus ou moins sûres, nous donnons à titre de comparaison les prévisions relatives à un proton indépendant. Nous pouvons tirer 4 conclusions :

1) Le rayonnement E_1 de 236 keV est ralenti plus de $1{,}5 \times 10^4$ fois. Le coefficient de conversion interne α_K peut donc être : soit normal, soit un peu plus grand que le coefficient théorique, ce qui est en accord avec notre valeur expérimentale.

2) La probabilité de transition M_2 du même rayonnement de 236 keV est ralentie d'un facteur de l'ordre de 30. Quelques valeurs connues pour des noyaux légers (^{41}K, ^{85}Rb, ^{73}Ge, ^{73}As, ^{75}As, ^{77}As) sont également ralenties d'un facteur de cet ordre.

3) Alors que l'accélération de la transition E_2 de 256 keV s'explique par le couplage très vraisemblable des niveaux de particule et des niveaux collectifs dans le ^{223}Ra, la nature M_1 pure du γ de 286 keV se comprend difficilement étant donné surtout la grande valeur du facteur d'interdiction de cette émission γ.

4) Si le rayonnement γ de 286 keV est réellement de nature M_1 lente, il serait intéressant de connaître son coefficient de conversion interne réel.

D) Déformation quadrupolaire du ^{223}Ra. — Le facteur d'atténuation de la corrélation angulaire en source solide est égal à 0,70. Si on admet que le spin du niveau intermédiaire est 3/2 et que le gradient de champ électrique est le même pour l'état intermédiaire 2 + de la cascade de désin-

tégration $\alpha - \gamma$ du Th 228, on obtient un moment quadrupolaire spectroscopique du niveau de 50 keV

$$Q_{3/2} \approx 0{,}28\ Q_{2+}\ (^{224}\text{Ra}).$$

Cette valeur donne une indication sur la valeur du moment quadrupolaire du niveau de 50 keV. Si le niveau de 50 keV caractérisé par un spin 3/2 est le niveau (761) 3/2 prévu par Nilsson [14], on s'attend à ce que le moment quadrupolaire du noyau dans cet état soit dû en partie au moment quadrupolaire de la particule indépendante.

La présence, à côté d'un niveau relativement favorisé au point de vue émission α, d'un triplet de niveaux peu interdits et la faible valeur du moment quadrupolaire électrique du niveau de 50 keV, ne permettent pas de classer le ^{223}Ra dans les noyaux de déformation axiale stable. Par contre, la grande valeur du facteur d'interdiction α du niveau fondamental, l'existence des transitions γE_1 lentes de 236 et 50 keV, comme il en existe de nombreux exemples dans les noyaux déformés, sont des arguments en faveur d'une déformation appréciable. On peut donc trouver des bandes de « rotation-vibration », basées sur les premiers niveaux de particules [15], [16]. Les intensités relatives des raies correspondantes de structure fine α, leurs énergies relatives s'expliquent bien si les niveaux de 29,8 ; 61, 3 ; 124, 2 et 174,4 keV font partie d'une bande de rotation $K = 1/2$, $\hbar^2/\mathfrak{I}_0 = 16{,}8$ keV, $a = 0{,}19$ (facteur de découplage) et $c = 5 \times 10^{-3}$ (facteur de correction du moment d'inertie $\mathfrak{I}_0$)

$$\mathfrak{I} = \mathfrak{I}_0[1 + cI(I + 1)].$$

Ce dernier facteur tient compte des couplages « rotation-vibration » et pour les noyaux pairs voisins nous avons :

	^{222}Ra	^{224}Ra	^{226}Ra
$10^3 \times c$	10,8	7,28	4,74.

Bien que pour l'isotope impair, la bande de rotation puisse être également perturbée, par la proximité des niveaux de particules de basse énergie, la proximité des valeurs de c pour les isotopes du Ra permet peut-être de classer ces noyaux dans la même catégorie des noyaux de transition « quasi-rotationnels ». Comme dans le cas similaire du ^{149}Sm, le moment quadrupolaire électrique serait faible alors que le paramètre de déformation des noyaux pairs voisins est relativement grand (# 0,17) [17].

L'absence dans le diagramme de Nilsson d'un niveau $\Omega = 1/2$ normalement occupé par 135 neutrons dans un noyau déformé, montre que théorie et expérience, ne sont pas actuellement suffisants pour caractériser quantitativement la déformation quadrupolaire du ^{223}Ra, qu'un certain nombre de faits laissent pourtant supposer non négligeable.

V. **Conclusion.** — L'ensemble de ces expériences confirme la cascade de spins :

$$3/2 \xrightarrow{236\ \text{keV}} 3/2 \xrightarrow{50\ \text{keV}} 1/2.$$

pour le ^{223}Ra dans les trois états envisagés, et permet de proposer pour le γ de 236 keV une nature $E_1 + M_2$ avec 3,6 ($\pm$ 2,4) $\times 10^{-4}$ comme rapport d'intensité $(M_2)/(E_1)$ ce qui justifie un coefficient de conversion interne

$$\alpha_K = 0{,}06 \pm 0{,}01.$$

Manuscrit reçu le 18 janvier 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Frilley (M.), Rosenblum (S.), Valadares (M.) et Bouissières (G.), *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 45.
[2] Pilger (R. C.), *Thèse*, 1957.
[3] Petit (G. Y.), *Thèse*, 1959.
[4] Vartapetian (H.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1958, **246**, 1680.
[5] Hyde (E. K.), *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 1221.
[6] Frilley (M.), *J. Physique Rad.*, 1940, **1**, 34.
[7] Abragam (A.) et Pound (R. V.), *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 943.
[8] Foucher (R.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1959, **249**, 2310.
[9] Steffen (R. M.), *Advances in Physics*, 1955, **4**, 294.
[10] Devons (S.) et Goldfarb (L. J. B.), *Handbuch der Physik*, 1957, **42**, 362.
[11] Rose (M. E.), Internal Conversion Coefficients, 1958.
[12] Ryshanov (S. G.), *J. E. T. P.*, S. S. S. R., 1959, **36**, 656.
[13] Petit (G. Y.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 447.
[14] Nilsson (S. G.), *Dan. Mat. Fys. Medd.*, 1955, **29**, n° 16.
[15] Bohr (A.), Rotational States of Atomic Nuclei, Copenhague, 1954.
[16] Bohr (A.) et Mottelson (B.), *Dan. Mat. Fys. Medd.*, 1953, **27**, n° 16 ; 1955, **30**, n° 1.
[17] Foucher (R.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1960, **250**, 4346.

SUR LES TRANSFORMATIONS DE L'ALLIAGE $MnSnCu_2$

Par P. TAGLANG,
Collège Universitaire de Mulhouse,
et
Mme FOURNIER,
Laboratoire de Physique, Clermont-Ferrand.

Résumé. — Par l'étude de la dilatation vraie, de la variation de la résistance électrique et par l'étude de rayons X il a été possible de confirmer dans l'alliage de Heusler $MnSnCu_2$ l'existence de deux transformations successives. Les propriétés ferromagnétiques observées sur cet alliage sont à attribuer à l'état stable entre les deux transformations.

Abstract. — The existence of two successive transformations in the Heusler alloy, $MnSnCu_2$, was ascertained by studying its real dilatation and the variation of its electrical resistance, and by X-rays investigations.
The ferromagnetic properties of this alloy are due to the steady state between the two transformations.

Depuis leur découverte par Heusler [1] en 1898, différents chercheurs se sont intéressés aux propriétés ferromagnétiques de l'alliage $MnSnCu_2$.

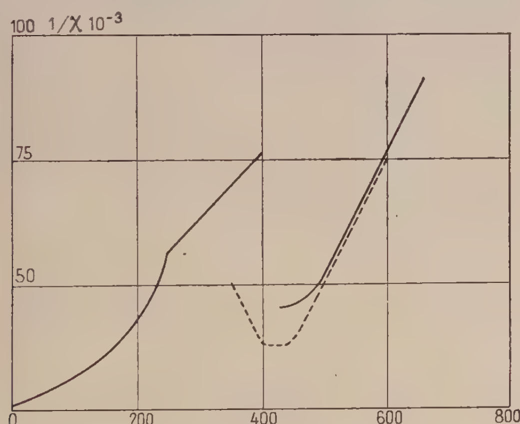


Fig. 1. — Étude paramagnétique.

Take [2], Stark et Haupt [3], Ashworth [4], Ross et Gray [5], Carapella et Hultgren [6], puis Taglang et Asch [7] se sont attachés à étudier les grandeurs ferromagnétiques de l'alliage. On associa le ferromagnétisme de cet alliage à sa phase dite B, stable à haute température. Taglang et Asch trouvèrent que le passage de l'état stable à basse température à la phase B ne se faisait pas par une transformation, mais par deux transformations successives. Ce fait a été mis en évidence tant par l'étude paramagnétique (*fig.* 1) que par l'étude de la chaleur spécifique (*fig.* 2).

L'étude paramagnétique, plus précise que l'étude calorifique, laissait prévoir une irréversibilité des deux transformations. Nous nous sommes proposés dans ce travail de préciser la nature de ces deux transformations et d'essayer de déterminer leur rôle dans l'établissement de la phase ferromagnétique.

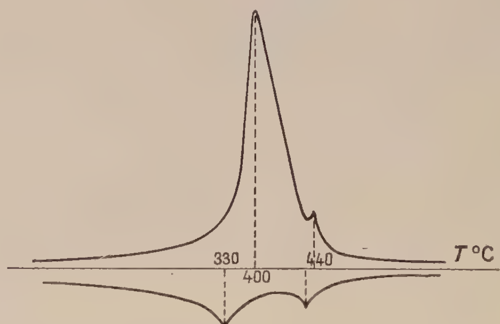


Fig. 2. — Analyse thermique différentielle.

Étude dilatométrique. — Une première série d'essais réalisés par chauffage lent et refroidissement lent nous permet d'obtenir la courbe de variation de l'allongement vrai (*fig.* 3) et la courbe de variation du coefficient de dilatation vraie (*fig.* 4).

Ces courbes laissent apparaître au chauffage deux irrégularités successives : le coefficient de dilatation devient infini à une température comprise entre 440° et 450 °C. Ce coefficient subit ensuite une discontinuité à 488°. La courbe de refroidissement présente les deux mêmes irrégularités à partir des hautes températures : une discontinuité à 450° et un

passage par l'infini entre 380° et 360°. Cet essai permet de conclure que l'alliage subit deux transformations : une transformation irréversible du premier ordre entre 440° et 450° au chauffage et 380°-360° au refroidissement.

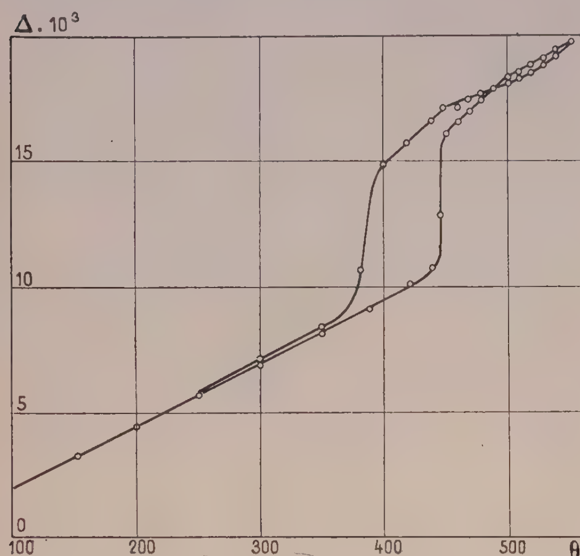


Fig. 3. — Dilatométrie avec chauffage et refroidissement lents.

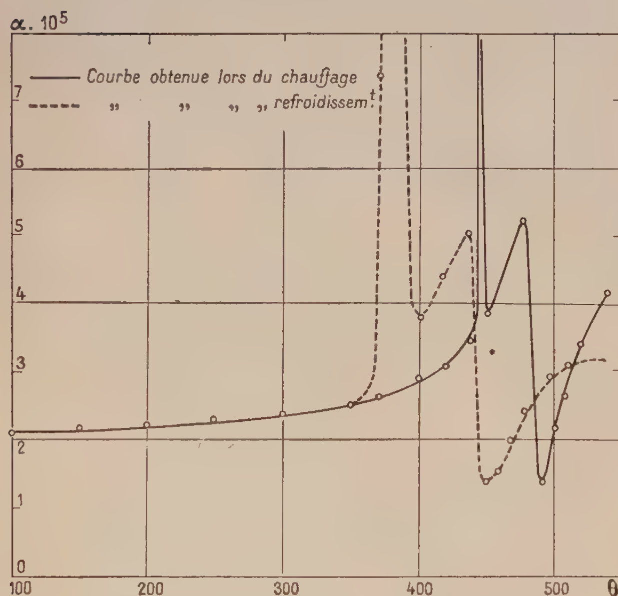


Fig. 4. — Coefficient de dilatation.
— Courbe chauffage lent.
— Courbe refroidissement lent.

Une transformation irréversible du second ordre à 488° au chauffage et 450° au refroidissement.

Une deuxième série d'essais réalisés par chauffage et refroidissement rapide (*fig.* 5) donne une courbe de variation du coefficient de dilatation au refroidissement. L'aspect de cette courbe semble prouver qu'il se produit un début de trempe ramenant jusqu'à 420° l'état existant au-dessus de la seconde transformation et que seule cette seconde transformation se produit. En effet la courbe de dilatation se termine par une parallèle à la courbe de chauffage, au-dessus de celle-ci, à une distance correspondant à la discontinuité provoquée par la transformation du premier ordre.

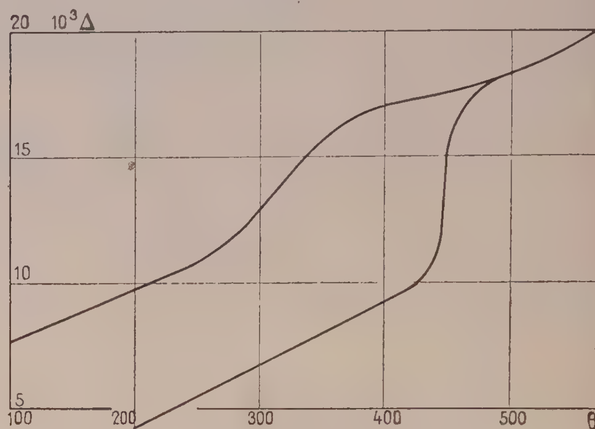


Fig. 5. — Dilatométrie avec chauffage lent et refroidissement rapide.

Étude de la résistance électrique. — On mesure la résistance électrique d'une petite tige de $MnSnCu_2$ en fonction de la température (*fig.* 6).

La courbe de variation obtenue au chauffage et au refroidissement présente le même aspect que la courbe de dilatométrie.

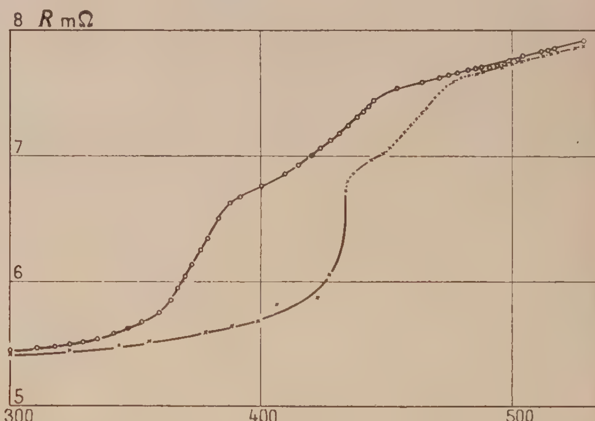


Fig. 6. — Variation thermique de la résistance électrique.

Le coefficient dR/dT (*fig.* 7) présente les mêmes anomalies avec un passage par l'infini et une discontinuité. Il y a cependant dans nos expériences un écart d'une dizaine de degrés entre les températures de transformation. Cela tient à des variations de composition infinitésimales entre les diffé-

rents échantillons utilisés. La transformation du premier ordre se situe à 432° au chauffage et entre 390° et 360° au refroidissement, la transformation du second ordre à 477° au chauffage et 450° au refroidissement.

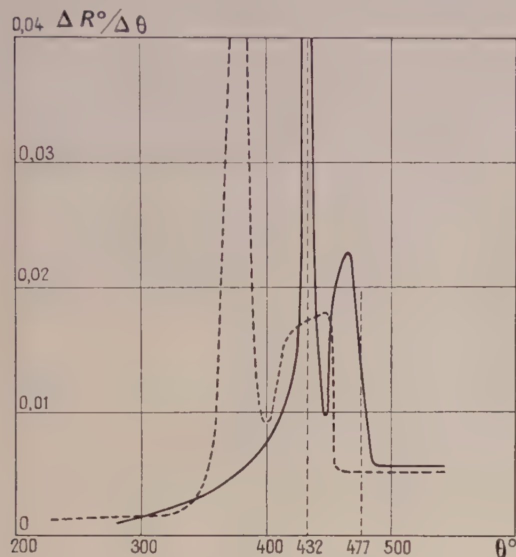


FIG. 7. — Variation thermique de dR/dT.

Ces deux séries d'expériences permettent de confirmer que l'alliage $MnSnCu_2$ se présente au cours du chauffage successivement sous trois états.

Étude aux rayons X. — Nous nous sommes intéressés aux phases qui, ramenées à la température ordinaire, sont ferromagnétiques. Mais la trempe ne permet pas, comme le montre la deuxième courbe de dilatométrie, de ramener à la température ordinaire l'état existant au-dessus de 477°. Ceci est confirmé par les diagrammes de poudre à froid qui présentent toujours le même aspect quelle que soit la température de trempe supérieure à 432°. L'état ramené à la température ordinaire est l'état existant entre 432° et 477°. Sa structure est cubique centrée de maille 3,07 Å avec surstructure à faces centrées de maille 6,14 Å. Dans ces conditions, il est normal d'admettre que la transformation du deuxième ordre à 477° correspond à la destruction de la surstructure. Cette hypothèse peut être confirmée par une étude aux rayons X à haute température, étude qui est en cours, mais qui n'a pas encore donné de résultats.

En conclusion, cette étude nous a permis de localiser de façon précise les deux transformations, et d'étudier leur nature : transformation irréversible du premier ordre, et transformation irréversible du deuxième ordre. Il en découle que les propriétés ferromagnétiques observées sur l'état trempé sont à attribuer à l'état stable entre 432 °C et 477 °C et non pas à l'état stable au-dessus de 477 °C, comme on l'admettait jusqu'ici. Ce fait est d'ailleurs en accord avec l'étude paramagnétique [7] qui faisait apparaître à haute température un moment paramagnétique (3,34 μB) inférieur au moment ferromagnétique (3,94 μB) observé pour l'état trempé.

Manuscrit reçu le 25 novembre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] HEUSLER (E.), *Verh. der deut. phys. Gesell.*, 1903, **5**, 219-223.
[2] TAKE (Tc), *Verh. der deut. phys. Gesell.*, 1914, **16**, 971-981.
[3] STARK (W.) and HAUPT, *Verh. der deut. phys. Gesell.*, 1903, **5**, 224-232.
[4] ASHWORTH, *Phil. Mag.*, octobre 1930, **10**, 681.
[5] ROSS (A.), On the magnetic properties and microstructure of the Heusler alloys. Read before the Faraday Soc., 23 April 1912.
[6] CARAPELLA (L. A.) et HULTGREN, The ferromagnetic nature of the Beta phase in the Copper — Manganese — Tin system. Tech. Pub. n° 455. Americ. Instit. of mining and metallurgical engineers.
[7] TAGLANG (P.) et ASCH (C.), *C. R. Acad. Sc.*, 1954, **238**, 2500.

SPECTRES D'ABSORPTION *K* DU ZIRCONIUM, DE SON OXYDE ET DE SON OXYCHLORURE (*)

Par Alexis GANSON,
Laboratoire de Chimie Physique de la Faculté des Sciences, Paris.

Résumé. — On expose les résultats d'étude par spectroscopie X des spectres d'absorption *K* du zirconium, de ZrO_2 et $ZrOCl_2$ anhydres et hydratés, ainsi que des solutions de $ZrOCl_2$, en fonction de l'épaisseur de l'écran absorbant (ou de la concentration de la solution). Les spectres ont été obtenus à l'aide d'un spectrographe Cauchois à cristal de mica courbé, par transmission. On montre que la discontinuité d'absorption *K* du zirconium métallique tombe en deux temps et on tente d'interpréter cet effet.

Abstract. — Results of an investigation on X-ray absorption spectra of zirconium, hydrated and anhydrous ZrO_2 and $ZrOCl_2$ as well as of solutions of $ZrOCl_2$ are given for varying absorbing screen thickness (or concentrations of the solutions). The spectra have been obtained with a Cauchois spectrograph with a bent mica crystal by transmission. The *K* absorption edge of metallic Zr has been shown to fall in two steps. An explanation is proposed.

En 1947-1948, M[lle] Y. Cauchois étudia les spectres d'absorption *K* des sels de nickel et de leurs solutions aqueuses, ainsi que les solutions aqueuses des chlorures de cuivre et de zinc [1, 2]. Afin d'étendre ces travaux aux autres éléments, elle nous a demandé d'étudier le zirconium et un de ses sels solubles : l'oxychlorure ($ZrOCl_2.8H_2O$ et $ZrOCl_2.5H_2O$), ce dernier à l'état solide et en solution acide diluée. Nous avons examiné aussi les spectres des oxydes ZrO_2 anhydre et hydraté et nous avons tenté d'interpréter l'ensemble des résultats obtenus.

Pour l'enregistrement des spectres, nous avons utilisé un spectrographe à cristal de mica courbé sous 40 cm, par transmission. Le dépouillement des spectres a été effectué sur les microphotogrammes obtenus avec un appareil Kipp perfectionné au laboratoire.

Les écrans absorbants étaient des feuilles métalliques de zirconium pur ou de la poudre enfermée entre deux feuilles de papier adhésif dans le cas du métal pulvérulent, de l'oxyde et du sel. Pour les solutions, nous utilisions des cuves à faces parallèles formées à l'aide de minces feuilles de mica. Chaque corps solide donnait lieu à la préparation de plusieurs écrans de densités superficielles différentes. L'étude des solutions était faite pour différentes concentrations (entre 23 et 353 mg/cm^3) en maintenant ici l'épaisseur de la cuve constante, égale à 1 mm.

Tous les calculs des longueurs d'onde étaient effectués d'après les pointés sur les microphotogrammes au grandissement 50 en opérant à l'aide d'un réglet permettant des mesures à $\pm$ 0,1 mm près, puis en appliquant l'interpolation linéaire entre deux raies encadrant le détail à localiser. Toutes les valeurs numériques des longueurs d'onde étaient relevées dans les tables de Y. Cauchois et H. Hulubeï [3]. En vue d'un contrôle permanent, nous déterminions accessoirement sur chaque enregistrement la longueur d'onde d'une ou de deux raies connues. En ce qui concerne la précision des résultats obtenus, toutes les erreurs systématiques devant être négligeables devant les erreurs de pointage, c'est uniquement de ces dernières que nous avons tenu compte dans nos calculs d'erreurs.

Chaque cliché donnait lieu à trois enregistrements microphotométriques au moins et chaque microphotogramme était soigneusement mesuré plusieurs fois avant l'adoption des chiffres définitifs. L'erreur sur une moyenne, prise sur tous les enregistrements de toutes les plaques relatives à un même écran absorbant, était estimée comme étant l'écart quadratique moyen.

(*) Ce travail est extrait du mémoire de Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur en Chimie Physique et soutenue le 24 juin 1959 devant la Commission d'examen.

TABLEAU I

	Écran	K_1 (uX)	K_2 (uX)	K_{moyen} (uX)
	—	—	—	—
2e ordre de réflexion	Feuille Zr ($e = 15$ μ)	687,53 ± 0,1	687,10 ± 0,1	—
1er ordre de réflexion	Feuille Zr ($e = 35$ μ)	non résolu		687,40 ± 0,03
»	Feuille Zr ($e = 20$ μ)	»	»	687,24 ± 0,05
»	Feuille Zr ($e = 15$ μ)	»	»	687,23 ± 0,03
»	Poudre Zr (5 mgr/cm^2)	»	»	687,23 ± 0,06

Les tableaux 1 et 2 résument nos résultats. En ce qui concerne le tableau 1 relatif au zirconium métallique, on voit que la discontinuité *K* n'a pu être résolue qu'en deuxième ordre de réflexion, ce qui est compréhensible étant donné l'épaisseur des écrans et la dispersion dans le domaine des longueurs d'onde où nous nous trouvions.

TABLEAU 2

Écran	Zr K (uX)	R. B. (uX)	α (uX)	*A* (uX)	β (uX)
$ZrO_2.nH_2O$ (7 mg/cm²)	687,05 ± 0,04				
$ZrO_2.nH_2O$ (13 mg/cm²)	687,08 ± 0,04	686,43 ± 0,11			
ZrO_2 anhydre (7 mg/cm²)	687,12 ± 0,06	686,19 ± 0,07			
ZrO_2 anhydre (13 mg/cm²)	687,10 ± 0,04	686,26 ± 0,01	685,15 ± 0,15		
$ZrOCl_2.5H_2O.HCl$ (11 mg/cm²)	687,09 ± 0,08	686,46 ± 0,10			
$ZrOCl_2.5H_2O.HCl$ (22 mg/cm²)	687,12 ± 0,06	686,47 ± 0,06	685,54 ± 0,04	684,34 ± 0,20	683,40 ± 0,20
$ZrOCl_2.8H_2O$ (11,5 mg/cm²)	687,09 ± 0,04	686,44 ± 0,12	685,46 ± 0,12	684,39 ± 0,20	683,19 ± 0,35
$ZrOCl_2.8H_2O$ (23 mg/cm²)	687,04 ± 0,06	686,35 ± 0,09	685,43 ± 0,10	684,25 ± 0,07	682,67 ± 0,20
Sol. $ZrOCl_2.8H_2O$ (c = 23,1 mg/cm³)	687,05 ± 0,09	686,40 ± 0,15	685,41 ± 0,04		
Sol. $ZrOCl_2.8H_2O$ (c = 57,5 mg/cm³)	686,96 ± 0,11	686,41 ± 0,12	685,72 ± 0,19		
Sol. $ZrOCl_2.8H_2O$ (c = 141,3 mg/cm³)	687,03 ± 0,02	686,46 ± 0,10	685,52 ± 0,03		
Sol. $ZrOCl_2.8H_2O$ (c = 247,3 mg/cm³)	687,06 ± 0,04	686,48 ± 0,29	685,31 ± 0,04	684,31 ± 0,20	
Sol. $ZrOCl_2.8H_2O$ (c = 353,3 mg/cm³)	687,03 ± 0,02	686,40 ± 0,13	685,42 ± 0,04	684,33 ± 0,18	683,16 ± 0,30

La comparaison des valeurs contenues dans ces deux tableaux permet de constater que la position moyenne de la discontinuité varie de quelques dixièmes d'uX (soit de 3 à 5 eV) lorsqu'on passe du métal à son oxyde ou à son oxychlorure. Cette variation a lieu dans le sens des courtes longueurs d'onde. On voit aussi que dans nos conditions d'expérience, la variation de la concentration des solutions d'oxychlorures n'influe pas de manière observable sur la position de la discontinuité, ni sur les positions des structures.

Le fait que ni les positions, ni les largeurs de différents détails de la structure fine ne subissent de modification quelque peu importante lorsque l'on passe du solide à la solution, semble indiquer qu'il n'y a pas de perturbation appréciable des positions et des largeurs des niveaux par les molécules du solvant lors de la dissolution du corps.

Aucun effet d'épaisseur n'a pu être mis en évidence pour les composés. Par contre, nous avons pu observer un effet d'épaisseur avec le zirconium métallique : la position moyenne de la discontinuité varie de 0,2 uX lorsque l'on passe de l'épaisseur de 20 μ à une épaisseur de 35 μ. Sur la figure 1 nous avons représenté la courbe donnant la longueur d'onde moyenne de la discontinuité d'absorption *K* du zirconium en fonction de l'épaisseur de l'écran absorbant d'après les résultats que nous avons obtenus. On peut constater que l'augmentation de l'épaisseur ne se manifeste pratiquement pas sur la longueur d'onde moyenne de la discontinuité tant que l'épaisseur reste inférieure à 20 μ. Par contre, au-dessus d'environ 20 μ on a constaté une forte variation de la position apparente de la discontinuité avec l'épaisseur de l'écran. De même, cette courbe peut expliquer l'absence de l'effet d'épaisseur dans le cas des composés et des solutions. En effet, les densités superficielles des composés et les concentrations des solutions traduites en densités superficielles du métal pur sont étalées dans nos expériences entre 0,7 et 10 mg/cm², c'est-à-dire que les points représentatifs se trouvent sur la branche ascendante de la courbe où aucune

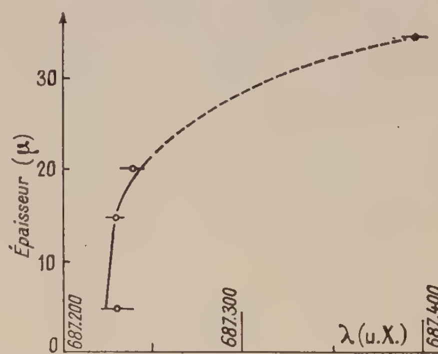


Fig. 1.

variation de la longueur d'onde de la discontinuité avec l'épaisseur n'est observable pour le métal.

Après examen critique des chiffres contenus dans les tableaux 1 et 2, nous avons retenu les valeurs définitives qui sont consignées dans les tableaux 3 et 4. Pour les solides nous prenions les valeurs correspondant aux plus faibles épaisseurs en retenant pour le zirconium pur la valeur obtenue en deuxième ordre de réflexion. Pour les solutions, comme il n'y avait aucun effet d'épaisseur observable, nous avons pris pour chaque détail de structure la moyenne pour toutes les concentrations.

TABLEAU 3

a) λ (uX)

Écran	Zr K		R. B.	α	*A*	β
	K_1	K_2				
Zr métallique	687,53 ± 0,10	687,10 ± 0,10				
$ZrO_2.nH_2O$	687,05 ± 0,04		686,43 ± 0,11			
ZrO_2	687,12 ± 0,06		686,19 ± 0,07	685,15 ± 0,15		
$ZrOCl_2.5H_2O.HCl$	687,09 ± 0,08		686,46 ± 0,10	685,54 ± 0,04	684,34 ± 0,20	683,40 ± 0,20
$ZrOCl_2.8H_2O$	687,09 ± 0,04		686,44 ± 0,12	685,46 ± 0,12	684,39 ± 0,20	683,19 ± 0,35
Sol. $ZrOCl_2.8H_2O$	687,03 ± 0,06		686,43 ± 0,16	685,46 ± 0,07	684,31 ± 0,19	683,16 ± 0,30

b) *E* (eV)

Écran	Zr K		R. B.	α	*A*	β
	K_1	K_2				
Zr métallique	17 992,7 ± 1,5	18 003,9 ± 1,5				
$ZrO_2.nH_2O$	18 005,1 ± 1,0		18 021,5 ± 2,9			
ZrO_2	18 003,3 ± 1,6		18 027,7 ± 1,8	18 055,2 ± 3,9		
$ZrOCl_2.5H_2O.HCl$	18 004,2 ± 2,4		18 020,7 ± 2,6	18 044,9 ± 1,0	18 076,5 ± 5,3	18 101,3 ± 5,3
$ZrOCl_2.8H_2O$	18 004,2 ± 1,0		18 021,2 ± 3,2	18 046,8 ± 3,2	18 075,2 ± 5,3	18 106,8 ± 9,2
Sol. $ZrOCl_2.8H_2O$	18 005,8 ± 1,6		18 021,5 ± 4,2	18 046,8 ± 1,8	18 077,2 ± 5,0	18 107,8 ± 7,9

TABLEAU 4

Positions des maxima et des minima d'absorption par rapport a la discontinuité (en eV)

Composé	R. B.	α	*A*	β
$ZrO_2.nH_2O$	16,4			
ZrO_2	23,8	51,3		
$ZrOCl_2.5H_2O.HCl$	16,5	40,7	72,3	97,1
$ZrOCl_2.8H_2O$	17,2	42,8	71,2	102,8
Sol. $ZrOCl_2.8H_2O$	15,7	41,0	71,4	102,0

Discussion de la courbe d'absorption du zirconium métallique. — Avant toute chose, nous avons recherché les données déjà existantes sur les spectres *K* d'émission et les spectres *L* d'absorption du zirconium, et nous les avons utilisées pour calculer la position du niveau de Fermi. Le schéma ci-dessous résume les éléments de notre calcul.

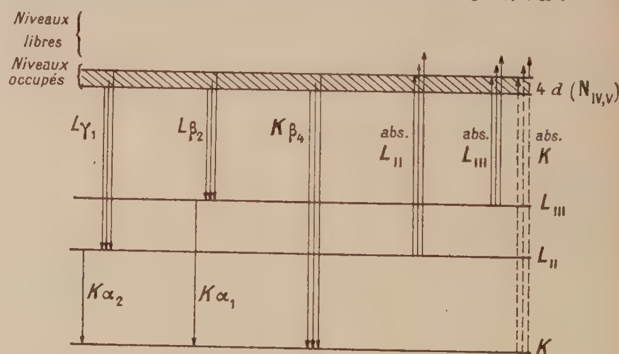


Schéma A.

Le tableau 5, p. 301, contient les résultats.

TABLEAU 5

Raies d'émission utilisées :	$K\alpha_2$ et $L\gamma_1$	$K\alpha_1$ et $L\beta_2$	$K\beta_4$	Valeur moyenne
—	—	—	—	—
	(17 992 ± 1,5) eV	(17 992 ± 1,5) eV	(17 992 ± 1,5) eV	(17 992 ± 1,5) eV,
Discontinuités d'absorption utilisée :	L_{II} (et $K\alpha_2$)	L_{III} (et $K\alpha_1$)		
	(17 993 ± 1,5) eV	(17 992 ± 1,5) eV		(17 992 ± 1,5) eV

Note. — Les valeurs utilisées pour construire ce tableau sont prises dans les tables de Y. Cauchois et H. Hulubeï [3] sauf celles relatives à $L\gamma_1$ et $L\beta_2$ qui ont été redéterminées par R. Liefeld [4].

Nous constatons que le niveau de Fermi est situé approximativement à 17 992 eV du niveau K (*).

Les transitions faisant intervenir les niveaux profonds L_{II} et L_{III} (émissions $L\gamma_1$, $L\beta_2$; absorptions L_{II} et L_{III}) sont d'après les règles de sélection des transitions $p \to s$ ou $p \to d$, les dernières étant prépondérantes, comme cela résulte du calcul des probabilités de transition. Nous en déduisons donc qu'au niveaux de Fermi le caractère des états est essentiellement du type d. Ceci est confirmé par la valeur relative à la transition quadrupolaire $K\beta_4$ et pourrait être grossièrement représenté, par analogie avec d'autres métaux de transition, par le schéma B

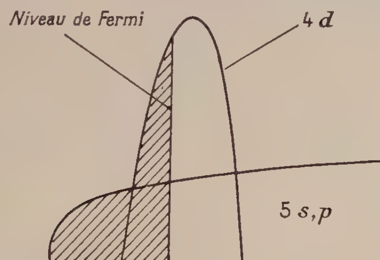


Schéma B. — Le caractère s est plus prononcé au début de la branche s, p ; il s'atténue progressivement lorsqu'on s'éloigne et devient à prépondérance p.

ci-contre, qui donnerait les positions des bandes $4d$, $5s$ – $5p$ et leur occupation électronique présumée dans le cas du zirconium. La région hachurée sur le schéma représenterait la distribution des 4 électrons externes dans le zirconium. On pourrait donc penser que l'occupation électronique dans le métal n'est pas $4d^2$, $5s^2$ comme dans le cas de l'atome libre, mais plutôt $4d^3$, $5s^1$.

Signalons qu'à l'heure actuelle nous n'avons pas connaissance de mesures magnétiques susceptibles de fournir des renseignements sur l'occupation électronique de la bande de valence du zirconium.

En nous tournant vers nos résultats, nous constatons la coïncidence de l'énergie correspondant à la première chute K_1 de la discontinuité avec celle correspondant au niveau de Fermi (la position de la première chute de la discontinuité est à 17 992,7 ± 1,5 eV et celle de la deuxième à 18 003,9 ± 1,5 eV). Nous pouvons donc identifier les transitions correspondantes comme étant de caractère $s \to d$ dominant. En effet, ces transitions tout en étant quadrupolaires doivent néanmoins avoir une probabilité appréciable étant donné la forte densité des états d au niveau de Fermi ; elles sont très probablement aussi favorisées par une hybridation p.

Quant à la deuxième chute K_2, nous pensons pouvoir l'interpréter comme étant due à des transitions $s \to p$, permises par les règles de sélection (cf. légende du schéma B).

L'homologue du zirconium dans la première série des métaux de transition (groupe du fer) est le titane. Son spectre K est situé dans un domaine où la dispersion (en énergie) est nettement meilleure et il présente une raie blanche bien prononcée (*), que l'on interprète sans difficulté comme étant due aux transitions vers les états d. Ce fait ne peut que renforcer la validité de notre interprétation.

On peut cependant songer à une autre interprétation, basée sur le travail [5] cité précédemment, relatif aux éléments de transition du groupe du fer. La première chute serait alors due à l'absorption « habituelle » (transitions vers la bande d avec possibilité de raie blanche, — non résolue dans notre cas, — accompagnée de transitions vers la bande s, p) ; la seconde à un phénomène double,

(*) Les valeurs de la deuxième ligne du tableau 5, déterminées à partir de raies d'émission, ont été obtenues en utilisant les maxima de ces raies. Ces valeurs permettent donc de situer le milieu approximatif de la partie occupée de la bande $4d$ ($N_{IV,V}$) (cf. schéma A). On devrait donc s'attendre à un décalage entre ces valeurs et celles de la deuxième ligne du tableau qui sont déterminées à partir des discontinuités d'absorption, ce décalage étant lié à la largeur de la partie occupée de la bande $4d$ ($N_{IV,V}$). Ce décalage peut être estimé comme étant de l'ordre de 1 eV (voir [4]). Notre tableau indique un décalage moins important (0,5 eV) mais il ne faut pas oublier que celui-ci est entaché d'une erreur probable de ± 1,5 eV.

(*) Voir [5]. Signalons aussi le travail de H. Sanner [6], qui a également étudié le spectre d'absorption de titane, mais la raie blanche n'a pas été résolue dans son spectre.

l'absorption du photon X étant accompagnée de l'émission d'un plasmon. Dans ces conditions, il est évident que la distance entre K_1 et K_2 (11,2 eV) serait égale à l'énergie du plasmon en jeu, dont la valeur théorique, calculée avec un seul électron de valence par la formule habituelle

$$\hbar\omega_p = \hbar\left(\frac{4\pi\, ne^2}{m}\right)^{1/2}$$

est égale à 7,6 eV (e et m sont respectivement la charge et la masse de l'électron et n est le nombre d'électrons de valence par unité de volume).

Malheureusement, le spectre des pertes caractéristiques d'énergie des électrons dans le zirconium, qui peut précisément mettre en évidence cette énergie, ne semble pas avoir été étudié de manière suffisamment précise [7], et nous interdit une comparaison rigoureuse.

Décomposition de la courbe d'absorption de $ZrOCl_2.8H_2O$. — Nous avons appliqué à la courbe d'absorption de $ZrOCl_2.8H_2O$ une variante de la méthode de décomposition proposée en 1952 par E. E. Vajnshtejn, R. L. Barinsky et K. I. Narbutt [8], tout en nous rendant compte que son application à notre cas ne pouvait être que très approchée. Cette méthode conduit à décomposer la courbe de variation du coefficient d'absorption en une suite de raies d'absorption dues à des transitions vers les niveaux discrets et le continuum d'absorption. Sa variante que nous avons utilisée a déjà été appliquée avec succès aux discontinuités de Br et de Zn dans $ZnBr_2$ [9]. Elle permet de réaliser la décomposition si l'on ne connaît avec certitude qu'un seul maximum de la courbe d'absorption qu'on identifie comme étant dû à la transition vers le premier niveau p libre (dans notre cas ce sera le niveau $5p$).

La décomposition faite, nous avons examiné ensemble la courbe expérimentale et la courbe théorique, obtenue en recomposant les raies discrètes et le continuum tels qu'ils sont donnés par la décomposition, et nous avons pu constater que l'accord était loin d'être réalisé. Bien que la méthode comporte un grand nombre d'approximations et qu'elle ait été appliquée ici à un composé de structure assez complexe, on aurait pu, malgré tout, s'attendre à un meilleur accord, étant donnés les résultats publiés par ses auteurs [8].

Or en examinant de façon critique leurs résultats, nous avons pu constater que d'une part ils utilisaient pour la largeur du niveau K la largeur non corrigée de la raie $K\alpha_1$, et que d'autre part s'ils avaient vraiment utilisé la largeur du niveau K ils n'auraient pas retrouvé une courbe théorique aussi proche de leur courbe expérimentale (*). Devant cet état de choses, nous nous sommes demandé si le désaccord (aussi bien le nôtre que celui que les auteurs de [8] auraient dû obtenir) ne venait pas du fait que la décomposition était toujours effectuée sur des courbes non corrigées de l'effet instrumental.

Tout en sachant que nous faisions une approximation grossière, nous avons supposé que la courbe traduisant l'effet instrumental avait une forme de Lorentz et nous avons appliqué la méthode qui a été mise au point par I. Ia. Nikiforov [11] et qui permet de déduire alors approximativement, de la courbe expérimentale brute, la contribution supposée de l'effet instrumental.

Après avoir obtenu ainsi la courbe corrigée, nous lui avons appliqué la décomposition précédente. Mais l'accord entre la courbe expérimentale et la courbe théorique n'était toujours pas satisfaisant. Nous avons alors examiné de plus près la théorie de la méthode de décomposition et nous avons pu relever un certain nombre d'erreurs de principe. Or, à l'époque, les auteurs de [8] s'en sont également aperçus et ils ont publié une rectification [12] et la proposition d'un autre procédé de décomposition. Par conséquent, une description détaillée de cette partie de notre travail devient inutile.

En terminant, nous tenons à remercier Mlle Y. Cauchois, professeur, pour l'intérêt qu'elle a porté à notre travail, ainsi que Mlle I. Manescu et Mlle Y. Héno pour les nombreuses discussions que nous avons eues avec elles.

(*) Nous l'avons vérifié dans le cas du germanium, où les auteurs de la méthode [8] utilisent pour la largeur du niveau K la valeur 3,7 eV, la valeur exacte étant de 2 eV d'après [10].

Manuscrit reçu le 16 janvier 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Cauchois (Y.), *C. R. Acad. Sc.*, 1947, **224**, 1556.
[2] Cauchois (Y.), *C. R. Acad. Sc.*, 1948, **227**, 65.
[3] Cauchois (Y.) et Hulubei (H.), Tables de Constantes et de Données Numériques, I, Paris, 1947.
[4] Liefeld (R. J.), *Thèse*, Ohio, U. S. A., 1959.
[5] Borovsky (I. B.) et Batyrev (V. A.), *Izv. Akad. Nauk SSSR, Ser. fiz.*, 1960, **24**, n° 4, 441.
[6] Sanner (H.), *Thèse*, Uppsala, 1940.
[7] Pradal (F.), *Thèse*, Toulouse, 1959.
[8] Vajnshtejn (E. E.), Barinsky (R. L.) et Narbutt (K. I.), *Zh. eksper. téor. fiz. SSSR*, 1952, **23**, n° 5, 593.
[9] Narbutt (K. I.), *Dokl. Akad. Nauk SSSR*, 1953, **93**, n° 1, 21.
[10] Parratt (L. G.), *Rev. Mod. Physics*, 1959, **31**, n° 3, 616.
[11] Nikiforov (I. Ia), *Izv. Akad. Nauk SSSR, Ser. fiz.*, 1957, **21**, n° 10, 1362.
[12] Nadjakov (E. G.) et Barinsky (R. L.), *Dokl. Akad. Nauk SSSR*, 1959, **129**, n° 6, 1279.

DIFFUSION DES PHOTONS SUR LES ATOMES ET LES NOYAUX DANS LES CRISTAUX

Par C. TZARA,
Section de Physique Nucléaire à Moyenne Énergie, C. E. N., Saclay.

Résumé. — On étudie la diffusion des photons par les atomes et les noyaux liés dans un solide avec ou sans cession de phonons. Selon la largeur de l'état excité (atomique ou nucléaire), relativement au spectre de vibration du cristal, la proportion de diffusion « sans recul » varie entre deux limites, l'une étant le facteur de Debye-Waller, l'autre le carré du facteur de Mössbauer-Lamb. L'interférence entre les processus atomique et nucléaire est examinée. Enfin l'émission sans recul d'un photon nucléaire à la suite d'une cascade de transitions est calculée sans faire appel à un phénomène de réarrangement des états cristallins.

Abstract. — Photon scattering by atoms and nuclei in solids is investigated. Depending on the excited (nuclear or atomic) state width compared to the crystal vibration spectrum, the proportion of recoilless scattering varies between two limits : the Debye-Waller factor on one side, the square of the Mössbauer-Lamb on the other. Interference between the two processes is examined. Finally the recoilless emission of a nuclear photon following a sequence of transitions is calculated without requiring a rearrangement phenomenon in the solid.

L'interaction des photons avec les atomes ou les noyaux liés dans un solide peut se produire sans cession de phonons au cristal. La diffraction des rayons X est un exemple de ce phénomène. Récemment Mössbauer a découvert l'émission et l'absorption sans recul de photons par les noyaux dans un solide [1]. Dans le présent travail, nous examinons entre autres les diffusions atomique et nucléaire dans les solides et leur interférence éventuelle en utilisant la théorie de Lamb [2].

Le cristal est composé d'atomes de masse M, à Z électrons. Les états et énergies propres du système électronique sont ψ_i et E_i, ceux du noyaux sont φ_j et W_j. L'état du cristal est défini par l'ensemble $\{ \alpha_s \}$ des nombres d'occupation dans chaque mode de vibration s. L'énergie propre de l'état $\{ \alpha_s \}$ est $E\{ \alpha_s \} = \sum_{\{\alpha_s\}} \alpha_s \hbar\omega_s$. A l'état d'équilibre, à température T, le poids statistique de chaque état $\{ \alpha_s \}$ est $g\{ \alpha_s \}$. Dans le cas où une espèce atomique est insérée dans un réseau d'un autre constituant, ce ne sont pas les degrés de liberté de l'ensemble qui sont à considérer, mais ceux des atomes intéressés.

1. Diffusion Rayleigh atomique. — La section efficace de diffusion d'un photon d'énergie k, impulsion $\boldsymbol{K}$ et polarisation $\boldsymbol{\epsilon}$ en un photon d'énergie k', impulsion $\boldsymbol{K}'$ et polarisation ε', le cristal étant initialement et finalement dans les états purs $\{ \alpha_s \}$ et $\{ \beta_s \}$, l'atome étant laissé dans l'état initial, est, en approximation non relativiste :

$$\frac{\mathrm{d}\sigma_R}{\mathrm{d}\Omega}(\{ \alpha_s \}\{ \beta_s \}\boldsymbol{KK}'\boldsymbol{\epsilon\epsilon}') = \Big| < \{ \beta_s \}| \mathrm{e}^{i\boldsymbol{qu}/\hbar} |\{ \alpha_s \} > < \psi_0 \Big| \sum_{j=1}^{Z} \mathrm{e}^{i\boldsymbol{qr}_j/\hbar} \Big| \psi_0 > \boldsymbol{\epsilon\epsilon}'$$

$$-\frac{1}{m}\sum_{\{n_s\},n} \frac{< \{ \beta_s \}| \mathrm{e}^{-i\boldsymbol{K}'\boldsymbol{u}/\hbar} |\{ n_s \} > < \{ n_s \}| \mathrm{e}^{i\boldsymbol{Ku}/\hbar} |\{ \alpha_s \} > < \psi_0 | \sum \mathrm{e}^{-i\boldsymbol{K}'\boldsymbol{r}_j/\hbar} p'_j | \psi_n > < \psi_n | \sum \mathrm{e}^{i\boldsymbol{Kr}_j/\hbar} p_j | \psi_0 >}{E_p - E_0 - k + E\{n_s\} - E\{\alpha_s\} + i\gamma}$$

$$+\frac{1}{m}\sum_{\{n_s\},n} \frac{< \{ \beta_s \}| \mathrm{e}^{i\boldsymbol{Ku}/\hbar} |\{ n_s \} > < \{ n_s \}| \mathrm{e}^{-i\boldsymbol{K}'\boldsymbol{u}/\hbar} |\{ \alpha_s \} > < \psi_0 | \sum \mathrm{e}^{i\boldsymbol{Kr}_j/\hbar} p_j | \psi_n > < \psi_n | \sum \mathrm{e}^{-i\boldsymbol{K}'\boldsymbol{r}_j/\hbar} p'_j | \psi_0 >}{E_n - E_0 + k' + E\{n_s\} - E\{\alpha_s\} + i\gamma}\Big|^2$$

$$\times (e^2/mc^2)^2 \, k'/k \qquad (1)$$

ici $\boldsymbol{q} = \boldsymbol{K} - \boldsymbol{K}'$ transfert d'impulsion

$$k' + E\{\beta_s\} = k + E\{\alpha_s\}$$

$\boldsymbol{u}$: coordonnée du centre de gravité de l'atome considéré dans le cristal ;

$\boldsymbol{r}_j$: coordonnées des électrons atomiques dans un système lié à l'atome.

Le premier terme décrit la diffusion Thomson par les Z électrons arrangés selon la configuration ψ_0. Le facteur de forme :

$$ZF(q) = < \psi_0 | \sum \mathrm{e}^{i\boldsymbol{qr}_j/\hbar} | \psi_0 >$$

(dans le cas d'un atome sphérique) suffit généralement à rendre compte de la diffusion cohérente si

l'énergie du photon est supérieure aux énergies des discontinuités d'absorption $E_n - E_0$ les plus fortes. Nous ne nous limiterons pas pour l'instant à ce terme.

Si k est très différent de $E_n - E_0$, $E_{n_s} - E_{\alpha_s}$ peut être négligé dans les dénominateurs des termes dispersifs du premier type ; si $k \simeq E_n - E_0$, cette approximation reste valable car la partie imaginaire $\gamma \simeq \frac{1}{2} \Gamma_n$, la largeur de l'état ψ_n est, pour les transitions les plus fortes, très supérieure à $E_{\{n_s\}} - E_{\{\alpha_s\}} \simeq k\Theta$, Θ étant la température de Debye du solide.

Dans les termes dispersifs du deuxième type, l'approximation est évidemment meilleure. La sommation $\sum_{\{n_s\}}$ s'effectue alors aisément puisque :

$$\sum_{\{n_s\}} |\{ n_s \} > < \{ n_s \}| = 1$$

et il vient :

$$\frac{d\sigma_R}{d\Omega} (\{ \alpha_s \} \{ \beta_s \}) \boldsymbol{KK'}\boldsymbol{\epsilon\epsilon'})$$
$$= |< \{ \beta_s \}| e^{i\boldsymbol{qu}/\hbar} | \{ \alpha_s \} >|^2$$
$$|ZF(q)\, \boldsymbol{\epsilon}.\boldsymbol{\epsilon}' + M^+ + M^-|^2 (e^2/mc^2)^2 \frac{k'}{k}. \quad (2)$$

Dans ce cas, le plus répandu, la section efficace dans un cristal est simplement le produit d'un facteur « cristallin » par la section efficace atomique. Si la section efficace varie rapidement dans des intervalles d'énergie de l'ordre de $k\Theta$, cette factorisation n'a plus lieu. C'est le cas des résonances de réaction $(n\gamma)$ [2], avec, ici, la complication supplémentaire des termes dispersifs.

Deux quantités facilement observables sont déduites de (1) : la section efficace de diffusion totale, intégrée sur tous les états finals possibles du cristal, $\frac{d\sigma_R^t}{d\Omega} (\boldsymbol{KK'\epsilon\epsilon'})$ et la section efficace de diffusion sans recul, $\frac{d\sigma_R^0}{d\Omega} (\boldsymbol{KK'\epsilon\epsilon'})$.

En nous plaçant dans les conditions de validité de (2) :

$$\frac{d\sigma_t^R}{d\Omega} = \sum_{\{\beta_s\}\{\alpha_s\}} g \{ \alpha_s \} |< \{ \beta_s \}| e^{i\boldsymbol{qu}/\hbar} | \{ \alpha_s \} >|^2 \frac{dS_R}{d\Omega}.$$

Si nous négligeons la variation de $\frac{dS_R}{d\Omega}$ en fonction de $k' = k + E_{\{\alpha_s\}} - E_{\{\beta_s\}}$ en utilisant :

$$\sum_{\{\beta_s\}} |\{ \beta_s \} > < \{ \beta_s \}| = 1 \quad \text{et} \quad \sum_{\{\alpha_s\}} g \{ \alpha_s \} = 1$$

nous obtenons évidemment :

$$d\sigma_R^t/d\Omega = d\sigma_R/d\Omega$$

et :

$$d\sigma_0^R/d\Omega = \sum_{\{\alpha_s\}} g \{ \alpha_t \} |< \{ |\alpha_s \}| e^{i\boldsymbol{qu}/\hbar} | \{ \alpha_s \} >|^2 \, d\sigma_R/d\Omega.$$

Pour un cristal isotrope, on trouve le facteur de Debye-Waller par un calcul immédiat calqué sur celui de Lamb :

$$\frac{d\sigma_R^0}{d\Omega} = \exp\left\{ -\frac{3}{2} \cdot \frac{q^2}{2M} \frac{1}{k\Theta} \left[1 + \int_0^1 \frac{4v\, dv}{e^{vx} - 1} \right] \right\} \frac{d\sigma_R}{d\Omega} \quad (3)$$

où

$$X = \Theta / T.$$

2. **Diffusion nucléaire résonnante.** — La diffusion résonnante est un phénomène à un seul quantum ou encore cohérent, lorsque l'état du diffuseur pendant le processus n'est pas observé [4]. C'est le cas de toutes les diffusions et réactions, où le temps de vie de l'état excité étant très court, le faisceau incident (la perturbation) et le faisceau diffusé sont pratiquement établis en permanence. Cependant les expériences où un délai est introduit entre l'onde incidente et l'observation d'une particule réémise [5] détruisent cette cohérence. Notons aussi que les transformations α ou β et les cascades de γ des noyaux peuvent être envisagées sous cet aspect ; la cohérence peut être détruite simplement en isolant l'état intermédiaire s'il a une vie assez longue ou bien par une interaction extérieure telle que le couplage entre le moment quadrupolaire de l'état intermédiaire et le champ cristallin.

Puisque la cohérence et l'absence d'information sur l'état du diffuseur pendant la diffusion sont liées, on s'attendrait à ce que la proportion de diffusion sans recul soit donnée par

$$\exp\left\{ -\frac{3}{2} \frac{q^2}{2M} \frac{1}{k\Theta} F(x) \right\} = \varphi$$

où figure le transfert global d'impulsion q et non par

$$\exp\left\{ -3 \frac{K^2}{2M} \frac{1}{k\Theta} F(x) \right\} = f^2$$

où figure le transfert d'impulsion lors de l'absorption ou de l'émission. En réalité le résultat varie entre ces deux extrêmes selon la largeur de l'état excité. En effet, en appelant

$$\frac{M(\boldsymbol{KK'\epsilon\epsilon'})}{W_1 - W_0 - k + i\Gamma/2}$$

l'amplitude de diffusion résonnante, la section efficace de diffusion sans recul est :

$$\frac{d\sigma_r}{d\Omega} (\{ \alpha_s \} \{ \alpha_s \} \boldsymbol{KK'\epsilon\epsilon'})$$
$$= \left| \sum_{\{n_s\}} \frac{< \{ \alpha \}| e^{i\boldsymbol{K'u}/\hbar} | \{ n_s \} > < \{ n_s \}| e^{i\boldsymbol{Ku}/\hbar} | \{ \alpha_s \} >}{W_1 - W_0 - k + E_{\{n_s\}} - E_{\{\alpha_s\}} + i\gamma} \right|^2$$
$$|M(\boldsymbol{KK'\epsilon\epsilon'})|^2. \quad (4)$$

Les deux cas limites sont : 1° Largeur de l'état excité φ_1 grande devant $k\Theta$; déjà examiné plus haut :

$$|E_{\{n_s\}} - E_{\{\alpha_s\}}| \ll |W_1 - W_0 - k + i\gamma|$$

et on obtient :

$$d\sigma_I^0/d\Omega = \varphi\, d\sigma_r/d\Omega.$$

2° Largeur $\Gamma \ll k\Theta$. Alors $|W_1 - W_0 - k| \simeq \Gamma$. Les transitions par des états intermédiaires du cristal $\{n_s\} \neq \{\alpha_s\}$ ne contribueront pas si $E_{\{n_s\}} - E_{\{\alpha_s\}} \gg \Gamma$. Il ne pourrait y avoir de contribution que de la part de transitions à un ou quelques phonons très mous : $\hbar\omega_s \to 0$. Mais leur densité $dN(\omega)/\alpha\omega$ varie en ω^2/Θ^3 ; on peut donc les négliger, d'autant mieux que la température de Debye est élevée. La somme dans (5) se réduit au terme $\{n_s\} = \{\alpha_s\}$, la partie imaginaire γ est égale à $\Gamma/2$. On a donc :

$$d\sigma_I^0/d\Omega = \sum_{\{\alpha_s\}} g\{\alpha_s\}|<\{\alpha_s\}|e^{-i\boldsymbol{Ku}/\hbar}|\{\alpha_s\}>|^2$$

$$|<\{\alpha_s\}|e^{i\boldsymbol{Ku}/\hbar}|\{\alpha_s\}>|^2\, d\sigma_r/d\Omega$$

$$= \exp\left\{-3\frac{K^2}{2M}\frac{1}{k\Theta}F(X)\right\}\frac{d\sigma_r}{d\Omega} = f^2\frac{d\sigma_r}{d\Omega}.$$

Dans le cas intermédiaire d'une largeur nucléaire assez importante, le résultat est plus compliqué, car la factorisation en termes dépendant du cristal et du noyau ne se fait plus.

3. **Interférence entre diffusion atomique et diffusion nucléaire résonnante.** — Dans le cas le plus fréquent, la diffusion Rayleigh est monotone, et la diffusion nucléaire a lieu sur un niveau très étroit. Nous avons dans ces conditions :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\{\alpha_s\}\{\beta_s\}\boldsymbol{KK'\epsilon\epsilon'})$$

$$= \Big|<\{\beta_s\}|e^{i\boldsymbol{qu}/\hbar}|\{\alpha_s\}>\frac{e^2}{mc^2}\left(\frac{k'}{k}\right)^{1/2}\mathcal{A}_R(\boldsymbol{KK'\epsilon\epsilon'})$$

$$+ <\{\beta_s\}|e^{-i\boldsymbol{K'u}/\hbar}|\{\alpha_s\}><\{\alpha_s\}|e^{i\boldsymbol{Ku}/\hbar}|\{\alpha_s\}>$$

$$\times\frac{M(KK'\varepsilon\varepsilon')}{W_1 - W_0 - k + i\Gamma/2}\Big|^2.$$

où :

$$\mathcal{A}_R(\boldsymbol{KK'\epsilon\epsilon'}) = ZF(q)\,\boldsymbol{\epsilon}.\boldsymbol{\epsilon}' + \dots$$

L'interférence entre les deux amplitudes a lieu quel que soit l'état final du cristal (l'interférence du type de Bragg ne peut avoir lieu que si le cristal est laissé dans l'état initial). Dans le premier cas :

$$\frac{d\sigma^0}{d\Omega} = \sum_{\{\alpha_s\}} g\{\alpha_s\}\frac{d\sigma}{d\Omega}(\{\alpha_s\}\{\alpha_s\}KK'\varepsilon\varepsilon')$$

$$= \varphi\frac{d\sigma_R}{d\Omega} + f^2\frac{d\sigma_r}{d\Omega}$$

$$+ \sum_{\{\alpha_s\}} g\{\alpha_s\}|<\{\alpha_s\}|e^{i\boldsymbol{qu}/\hbar}|\{\alpha_s\}><\{\alpha_s\}|$$

$$e^{i\boldsymbol{K'u}/\hbar}|\{\alpha_s\}><\{\alpha_s\}|e^{-i\boldsymbol{Ku}/\hbar}|$$

$$\{\alpha_s\}>\frac{\mathcal{A}_R S\, M^*}{W_1 - W_0 - k - i\Gamma/2} + C.C|\times e^2/mc^2$$

au premier ordre les éléments de matrice :

$$<\{\alpha_s\}|e^{i\boldsymbol{pu}/\hbar}|\{\alpha_s\}>$$

$$\simeq \prod_{S=1}^{3N}<\alpha_s\Big|1 + \frac{1}{2}\frac{p_s^2}{2MN\hbar\omega_s}(2N_s + 1)\Big|\alpha_s>$$

sont réels, donc :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \varphi\frac{d\sigma_R}{d\Omega} + f^2\frac{d\sigma_r}{d\Omega}$$

$$+ \varphi^{1/2} f\left[\frac{\mathcal{A}_R\, M^*}{W_1 - W_0 - k - i\Gamma/2} + C.C.\right]$$

$\mathcal{A}_R\, M^*$ est réel. Le terme d'interférence varie donc avec l'énergie comme :

$$\frac{W_1 - W_1 - k}{(W_1 - W_0 - k)^2 + \Gamma^2/4}.$$

Si les photons incidents proviennent d'une source de même nature émettant sans recul, l'intégration sur le spectre $\dfrac{1}{(W_1 - W_0 - k)^2 + \Gamma/4}$ fait disparaître le terme d'interférence. Celui-ci ne subsiste que si la raie incidente est dissymétrique par rapport à $W_1 - W_0$, par exemple si la source est animée d'une vitesse qui décale l'énergie de $(v/c)k$.

La diffusion totale a pour section efficace, en admettant l'approximation $k' = k$:

$$\frac{d\sigma^t}{d\Omega} = \sum_{\{\alpha_s\}\{\beta_s\}} g\{\alpha_s\}\frac{d\sigma}{d\Omega}(\{\alpha_s\}\{\alpha_s\})$$

$$= \frac{d\Omega}{d\sigma_R} + f\frac{d\sigma_r}{d\Omega}$$

$$+ f\frac{2(W_1 - W_0 - k)}{(W_1 - W_0 - k)^2 + \Gamma^2/4}\mathcal{A}_R\, Me^2/mc^2$$

à quoi s'applique la même discussion que pour $d\sigma^2/d\Omega$.

Conclusion. — La diffusion atomique et la diffusion résonnante nucléaire sont des processus cohérents. Les facteurs de Debye-Waller pour ces deux

processus dépendent essentiellement de la largeur des niveaux vis-à-vis du spectre de vibration du cristal. Pour des raies très étroites, la diffusion procède par un état intermédiaire du cristal bien défini identique à l'état initial. Pour des raies très larges, ou une section efficace monotone, l'état intermédiaire du cristal n'est pas défini : le processus passe par tous les états intermédiaires possibles du cristal. En d'autres termes, dans le cas de raies très étroites, le temps caractéristique de diffusion est long, la configuration des positions de l'atome dans le cristal pendant la diffusion est moyennée, ce qui correspond au mélange statistique d'états à l'équilibre. Pour des raies larges, ou des temps caractéristiques très courts, la moyenne n'a pas le temps de se faire, la diffusion a lieu sur une configuration instantanée. Notons que le premier terme dans la diffusion Rayleigh décrivant la diffusion Thomson, comporte une sommation implicite sur des états intermédiaires. En effet l'expression rigoureuse de la diffusion Thomson fait apparaître des termes dispersifs de la forme :

$$\lim_{h=0} \sum_{\{n_s\} v_i} \frac{< \{ \beta_s \} | e^{-i\boldsymbol{K}'\boldsymbol{u}/\hbar} | \{ n_s \} > < \{ n_s \} | e^{i\boldsymbol{K}\boldsymbol{u}/\hbar} | \{ \alpha \} > < v_0 | \boldsymbol{\alpha} \boldsymbol{A}' | v_i > < v_i | \boldsymbol{\alpha} \boldsymbol{A} | v_0 >}{\pm \sqrt{m^2 c^4 + c^2 p'^2} - mc^2 \pm k + E\{s_u\} - E\{s_x\}}$$

les états intermédiaires sont à énergie positive ou négative et l'ordre d'absorption et d'émission est inversé. Lorsque $k = 0$, les termes relatifs aux états d'énergie positive s'annulent. Seuls les états d'énergie négative contribuent, et leurs dénominateurs sont de la forme

$$- \sqrt{m^2 c^2 + c^2 p'^2} - mc^2 + E\{n_s\} - E\{\alpha_s\} \rightarrow - 2mc^2 + E\{n_s\} - E\{\alpha_s\}$$

$E_{\{n_s\}} - E_{\{\alpha_s\}}$ peut être négligé, d'où la possibilité de sommer sur les états intermédiaires $\{ n_s \}$.

L'interférence entre la diffusion résonnante et la diffusion atomique est à rapprocher de l'interférence entre photoélectrons et électrons de conversion [6].

L'auteur tient à remercier MM. Abragam, Barloutaud, Cotton, Picou pour les discussions qu'il a eues avec eux.

APPENDICE

Émission d'une cascade de deux photons. — Le noyau est initialement dans l'état excité d'énergie W_2, de largeur infiniment fine, et en équilibre thermique dans le réseau. Il émet un photon k_2, $\boldsymbol{K}_2$ (ou un électron de conversion E_2, $\boldsymbol{p}_2$) par transition à l'état φ_1 d'énergie W de largeur Γ puis un photon au fondamental. Le problème est de calculer la probabilité d'émission sans recul du photon k_1. Elle est proportionnelle à :

$$\sum_{\{\beta_s\}\{\alpha_s\}} g\{\alpha_s\} \left| \sum_{n_s} \frac{< \{ \beta_s \} | e^{i\boldsymbol{K}_1\boldsymbol{u}/\hbar} | \{ n_s \} > < \{ n_s \} e^{i\boldsymbol{K}_2\boldsymbol{u}/\hbar} | \{ \alpha_s \} >}{W_1 - W_2 + k_2 + E\{n_s\} - E\{\alpha_s\} + i\gamma} \right|^2 \qquad (1)$$

avec

$$k_2 + k_1 + E\{\beta_s\} = W_2 + E\{\alpha_s\}. \qquad (2)$$

L'émission du photon k_1 sans recul signifie que l'état du cristal ne change pas au cours de la deuxième transition : $\{ n_s \} = \{ \beta_s \}$. En même temps nous nous plaçons dans l'hypothèse que l'état cristallin intermédiaire subsiste plus longtemps que $\hbar/\Gamma$ autrement dit qu'il n'y a pas de réarrangement spontané pendant le temps de vie de l'état intermédiaire. Alors (1) devient, avec l'aide de (2)

$$\sum_{\{\beta_s\}\{\alpha_s\}} g\{\alpha_s\} \frac{|< \{ \beta_s \} | e^{i\boldsymbol{K}_1\boldsymbol{u}/\hbar} | \{ \beta_s \} > < \{ \beta_s \} | e^{i\boldsymbol{K}_2\boldsymbol{u}/\hbar} | \{ \alpha_s \} > |^2}{(W_1 - k_1)^2 + \Gamma^2/4}.$$

La raie k_1 est donc émise avec sa largeur naturelle. Le terme cristallin s'évalue comme suit :

$$\sum_{\{\beta\}\{\alpha_s\}} g\{\alpha_s\} \prod_{s=1}^{3N} |<\{\beta_s\}|1 - k_{1s}^2(2N_s+1)|\{\beta_s\}>|$$

$$|<\{\beta_s\}|1 - \frac{k_{2s}^2}{2}(2N_s+1) + ik_{2s}(a_s + a_s^+)|\{\alpha_s\}>|^2 \quad (3)$$

en posant

$$k_{1s} = \boldsymbol{K}_1\, \boldsymbol{\epsilon}_s(2MN\hbar\omega_s)^{-1/2}$$

$$\doteq \sum_{\{\alpha_s\}} g\{\alpha_s\} \prod_{s=1}^{3N} [\{1 - k_{1s}^2[2(\alpha_s+1)+1]\}\alpha_s k_{2s}^2$$
$$+ \{1 - k_{1s}^2(2\alpha_s+1)\}\{1 - k_{2s}^2(2\alpha_s+1)\}$$
$$+ \{1 - k_{1s}^2[2(\alpha_s+1)+1]\}(\alpha_s+1)k_{2s}^2] \quad (3)$$

au premier ordre en k_{1s}^2 il ne reste que

$$\sum_{\{\alpha_s\}} g\{\alpha_s\} \prod_s [1 - k_{1s}^2(2\alpha_s+1)]$$

qui est l'expression du facteur d'émission sans recul d'un photon k_1 égal, pour un cristal de Debye à :

$$\exp\left\{-\frac{3}{2}\frac{K_1^2}{2M}\frac{1}{k\Theta}F(X)\right\}.$$

Ceci démontre le fait expérimental reconnu que l'émission d'un photon Mössbauer a lieu indépendamment de l'histoire antérieure du système, sans qu'il soit utile pour l'expliquer de faire appel à un réarrangement du cristal après les émissions précédentes. Les états intermédiaires du cristal se comportent comme un état d'équilibre pratiquement identique à l'état d'équilibre initial $g\{\alpha_s\}$.

L'explication par le réarrangement cristallin se révèle nécessaire si le recul $K_2^2/2M$ est considérable et détruit localement le réseau.

Manuscrit reçu le 5 janvier 1961.

RÉFÉRENCES

[1] Mossbauer (R. L.), *Z. Physik*, 1958, **151**, 124.
[2] Lamb (W. E.), *Phys. Rev.*, 1939, **55**, 190.
[4] Heitler (W.), Quantum Theory of radiation, Oxford, University Press.
[5] Holland (R. E.), Lynch (F. J.), Perlow (G. J.) et Hanna (S. S.), *Phys. Rev.*, Letters, 1960, **4**, 181.
[6] Cf. Lipkin, dans « Mössbauer Effect », ed. de l'Université d'Illinois, TN, 60.698.

REVUE DES LIVRES

Depassel (R.), **Écoulement de l'air à grande vitesse dans un tuyau de section circulaire,** Un vol. broché 98 p. (18 × 27 cm), Publications scientifiques et techniques du Ministère de l'Air, Paris, 1960, prix : 14,50 NF.

Exposé théorique complet, clair et simple (avec étude de la couche limite, du régime turbulent, diverses méthodes d'approximations) : puis exposé des dispositifs expérimentaux et des résultats obtenus.

J. Winter.

Fleury (P.) et Mathieu (J. P.), **Lumière.** Un vol. relié de 525 p. (16 × 24 cm), Eyrolles, Paris, 1961, prix : 69 NF.

Le tome V (septième volume paru) du *Traité de Physique générale et expérimentale* de P. Fleury et J. P. Mathieu (qui doit en comprendre huit) est consacré à la lumière. Il complète le volume *Images Optiques*, paru il y a quatre ans et qui en est déjà à sa deuxième édition.

L'ouvrage est divisé en trois parties essentielles ; mesures concernant la lumière, réflexion et transmission de la lumière, spectres des atomes, des molécules et des cristaux. Cet ensemble est précédé d'une rapide introduction et il est suivi de quelques compléments sur la lumière en géophysique, en astrophysique, en chimie et en biologie, ainsi que de quelques notions sur le principe de relativité et sur la mécanique des photons.

On retrouve dans ce livre les qualités d'ordre, de précision et de clarté qui ont assuré le succès de ses prédécesseurs. On y insiste toujours sur les faits d'expérience, que l'on relie et que l'on explique au moyen des deux grandes théories de Maxwell et de Planck, mais ce qui en fait l'originalité et l'intérêt tout particuliers, c'est le fait que les auteurs sont parmi les meilleurs spécialistes de l'optique, aux progrès de laquelle ils ont apporté une contribution personnelle importante et appréciée.

Nul doute que cet excellent ouvrage d'enseignement connaîtra un succès au moins aussi grand que ceux des mêmes auteurs qui l'ont précédé.

P. Rouard.

Martinot-Lagarde (A.), **Similitude physique. Exemples d'applications à la mécanique des fluides.** Un livre broché de 70 p. (16 × 25 cm), prix 14 NF., Gauthier-Villars, Paris, 1960 (Collection Mémorial des Sciences physiques).

I. Généralités sur la similitude. II. Méthode dimensionnelle, théorème de Vaschy, équations réduites. III. Remarques sur la méthode dimensionnelle. IV. Méthode directe pour la recherche de la similitude (sans passer par l'équation aux dimensions).

J. Winter.

THÉORIE DE L'EFFET PHOTOÉLECTRIQUE DES MÉTAUX

Par A. MEESSEN,
C. P. N. L., Université de Louvain.

Résumé. — L'effet photoélectrique des métaux n'est plus considéré comme un effet de surface, mais comme un effet de volume, déterminé par les processus suivants :

(1) La pénétration de la lumière dans le film métallique. Pour éliminer ce facteur capricieux, il est préférable de se référer à l'efficience photoélectrique Y_a par photon absorbé, qu'à l'efficience Y par photon incident.

(2) La photoexcitation par transitions obliques, qui fournit la densité et la distribution d'énergie des électrons excités.

(3) La portion p d'électrons excités qui se meuvent vers la surface dans un angle solide tel que la composante normale de la vitesse est suffisante pour passer la barrière de potentiel à la surface. Ce facteur rapidement variable, détermine la distribution spectrale, surtout dans l'approximation de la formule de Fowler-DuBridge.

(4) Les interactions individuelles ou collectives des électrons excités avec les autres électrons, qui produisent une absorption ou une émission secondaire des photoélectrons.

Y et Y_a peuvent être calculés — soit pour des films très minces en tenant compte de la distribution d'énergie des électrons excités — soit avec l'approximation monocinétique, en tenant compte de la pénétration de la lumière, de l'absorption des électrons et de l'épaisseur du film. L'immense efficience photoélectrique des métaux dans l'ultraviolet lointain est le prolongement normal de l'effet photoélectrique de volume, observé près du seuil.

Abstract. — The photoelectric effect of metals is no longer considered as a surface effect but as a volume effect, determined by the following processes :

(1) The penetration of light into the metal film, which is responsible for the inadequacy of measurements of the photoelectric efficiency Y per incident photon. It is preferable to refer to the efficiency Y_a per absorbed photon.

(2) The photoexcitation by oblique transitions, which determines the density and energy distribution of the excited electrons.

(3) The portion p of excited electrons, moving to the surface in a solid angle such that the velocity normal to the surface allows emission over the potential barrier. This rapidly varying factor actually determines the spectral distribution near the threshold, especially in the approximation of the Fowler-DuBridge formula.

(4) The individual or collective interactions of the excited electrons with the other electrons, which produces absorption or secondary emission of electrons. The experimental electron absorption length thus obtained for K, shows that the theory of individual electron interactions needs to be improved.

Y and Y_a can be calculated — with the real energy distribution of the excited electrons, assuming very thin films — or in the monocinetic approximation, considering the influence of light penetration, electron absorption and film thickness. This method is very simple and useful. The very large photoelectric efficiency of metals such as Be in the far ultraviolet is no more than the normal prolongation of the volume effect observable near the threshold.

Introduction. — L'effet photoélectrique est un effet découvert déjà au siècle dernier [1] mais qui nécessite la description quantique de l'interaction entre un électron du solide et un photon incident [2].

Dans les *théories semi classiques* [3] on ne décrit pas ce processus d'interaction ; on se contente d'admettre que l'électron absorbe l'énergie du photon incident et que la photoexcitation a lieu dans le volume du métal, suivant l'absorption exponentielle de la lumière incidente. Ces théories de l'émission photoélectrique sont déterminées par la description de la sortie de ces électrons excités du métal, où ils n'ont qu'un libre parcours moyen donné. J. J. Thomson [4] admet

$$I = I_0 \, e^{-\alpha x} \quad \text{et} \quad E_0^2 - E_1^2 = \beta x$$

pour l'absorption de la lumière incidente et pour la perte d'énergie des électrons sur un parcours X. Si E est l'énergie initiale des électrons excités et si W est l'affinité électronique, on obtient finalement pour le courant photoélectrique

$$i(\nu) = A I_0 \frac{\alpha}{\beta} (E - W)^2 \quad \text{avec} \quad A = \text{Cte}.$$

Si nous introduisons la notion plus moderne du niveau de Fermi μ, on peut en déduire pour la distribution spectrale du courant photoélectrique près du seuil photoélectrique

$$i(\nu) \sim (h\nu - h\nu_0)^2$$

car le seuil photoélectrique est égal au travail d'extraction $h\nu_0 = W - \mu$ et l'énergie $E \simeq \mu + h\nu$. De plus le courant photoélectrique sera proportionnel au rapport entre le libre parcours moyen de l'électron et celui du photon.

La théorie de Fowler [5] *et DuBridge* [6] donne en première approximation un résultat semblable pour la distribution spectrale près du seuil photoélec-

trique. Mais elle explique en plus que le courant photoélectrique augmente quand la température augmente, dans le voisinage du seuil photoélectrique (*).

Cette théorie considère la distribution d'énergie de Fermi-Dirac des électrons de la bande de conduction du métal : $N(\varepsilon, T) = n(\varepsilon).f(\varepsilon, T)$ et le flux correspondant d'électrons de la bande de conduction du métal qui se meuvent vers la surface avec une énergie cinétique ε_x : $N(\varepsilon_x, T)$. Pour que l'électron excité puisse sortir du métal il faut que $\varepsilon_x + h\nu \geqslant W$. En supposant que (1) la probabilité de photoexcitation et (2) la probabilité de sortie des photoélectrons soit indépendante de la fréquence dans le voisinage du seuil photoélectrique on obtient

$$i(\nu) = A \int_{W-h\nu}^{\infty} N(\varepsilon_x, T) \, \mathrm{d}\varepsilon_x = CT^2 \, \varphi(x)$$

où $\varphi(x)$ est la fonction universelle de Fowler et $x = (h\nu - h\nu_0)/kT$. Cette théorie simple est en bon accord avec l'expérience et permet de déterminer d'une façon univoque le travail d'extraction qui est le seuil photoélectrique à 0 °K :

$$h\nu_0 = W - \mu.$$

En première approximation on trouve encore une distribution spectrale

$$i(\nu) \sim (h\nu - h\nu_0)^2.$$

Mais la théorie de l'émission photoélectrique ne sera pas satisfaisante, tant qu'on n'a pas su décrire l'interaction électron-photon et déterminer la probabilité de photoexcitation.

Comme la conservation de l'énergie et de l'impulsion dans cette interaction électron-photon, n'est possible que si l'électron est soumis à un potentiel, Tamm et Schubin [8] ont introduit la distinction entre *un effet photoélectrique de surface et un effet photoélectrique de volume.* La photoexcitation peut avoir lieu quand l'électron est réfléchi par la barrière de potentiel à la surface du métal ou quand l'électron subit une réflection de Bragg sur le potentiel périodique dans le volume du métal. Doit-on considérer un effet de surface ou un effet de volume ?

Les premiers résultats théoriques semblaient exclure un effet de volume près du seuil photoélectrique $h\nu_0$ et les calculs pour l'effet de surface semblaient être en bon accord avec l'expérience. L'effet de volume ne deviendrait important que dans l'ultraviolet, au delà d'un second seuil photoélectrique [8, 13].

L'idée communément admise, que l'effet photoélectrique des métaux est un effet de surface, au moins près du seuil photoélectrique, ne fut ébranlée qu'en 1957 par le travail expérimental et théorique du groupe Mayer, Thomas et Methfessel [9, 10, 11].

Notre objectif sera de revoir le problème et d'approfondir la théorie de l'effet photoélectrique de volume, comme nous l'avons fait pour la théorie de la photoexcitation dans le volume d'un métal [12]. On doit y ajouter l'étude du processus d'émission des électrons excités, donc surtout l'influence des diffusions des électrons susceptibles d'être émis, ce qui était sans importance pour l'effet photoélectrique de surface.

L'échec des théories de l'effet photoélectrique de surface. — Ces théories ont pour objet, le calcul de la probabilité de photoexcitation pour un électron qui est réfléchi par la barrière de potentiel à la surface du métal. Il suffit donc de considérer l'interaction entre l'onde lumineuse incidente, non amortie, et l'électron dont la fonction d'onde est exponentiellement amortie à l'extérieur du métal.

Tamm et Schubin [8] supposent un potentiel qui varie de façon discontinue à la surface du métal et une seule surface pour un bloc de métal semi-infini. Fröhlich [13] considère au contraire un film très mince du métal et tient compte des deux surfaces, les potentiels variant de façon continue. Mitchell [14] tient compte du comportement du vecteur électrique à la surface, pour la lumière incidente, réfléchie et transmise, en se basant sur les théorie classiques qui donnent une variation discontinue. Il tient compte aussi de la rugosité de la surface. Myers [15] a refait ce calcul pour un potentiel de force image au lieu du potentiel discontinu et Houston [16] l'a refait pour un potentiel de forme assez quelconque. Machinson [17] rejette la variation discontinue de E à la surface du métal, prévue par les théories classiques et calcule le comportement de E à la surface d'après une approximation semiclassique. Buckingham [18] a raffiné cette théorie en tenant compte d'une barrière de potentiel à la surface, qui dépendrait de l'impulsion de l'électron, d'après la suggestion de Bardeen [19].

Le résultat caractéristique de tous ces calculs est 1) l'existence d'un maximum dans la courbe de distribution spectrale et 2) le fait que la composante du vecteur électrique, normale à la surface, joue un rôle privilégié, ce qui donne une dépendance de la polarisation et de l'angle d'incidence de la lumière. Comme ce maximum et cette sélectivité spectrale pour la lumière polarisée sont bien connus expérimentalement pour les métaux alcalins [3, 20] ces théories semblaient être justifiées.

(*) Nous avons précédemment étudié l'influence de la température sur l'effet photoélectrique des métaux [7] en nous basant sur la théorie de Fowler-DuBridge et en admettant une dépendance de la température du travail d'extraction

$$\Phi = \Phi_0 + aT + bT^2 \simeq \Phi_0 + 10^{-5} \, T + 10^{-8} \, T^2 \text{ (eV)}.$$

Ceci a été confirmé directement par des mesures sur le potentiel de contact pour Mo, par Gelberg, Losifesku Komsha, Mussa, *Radio Eng. and Electr.*, U. S. S. R., 1958, 3, 1000.

Mais au fur et à mesure que la théorie se perfectionnait, on se rendait compte d'un désaccord quantitatif entre la théorie et l'expérience, ce que certains attribuaient à l'ambiguïté des résultats expérimentaux [17] et d'autres à l'importance du coefficient de transmission de la surface [18].

D'autre part on peut montrer que la raison de l'existence du maximum et de la sélectivité spectrale pour la lumière polarisée, ne doit pas être recherchée dans le processus de photoexcitation lui-même, comme on le fait ici, mais plutôt dans les propriétés optiques classiques des films minces, qui déterminent l'intensité de la lumière dans ce film. Ceci avait déjà été démontré par Ives et Briggs [21] qui comparent les résultats expérimentaux pour des films minces de K sur un miroir de Pt, avec les résultats de leur calcul. Ceci est confirmé aussi par d'autres études [20] pour des films minces de K sur un dépôt de quartz. L'efficience photoélectrique par photon incident et le pouvoir d'absorption du film de K présentent la même sélectivité spectrale par rapport à la lumière polarisée, tandis que l'efficience photoélectrique

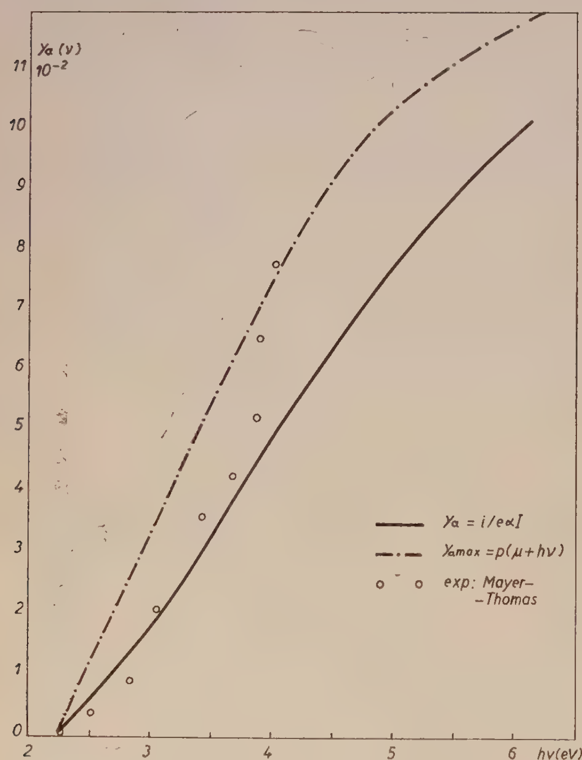


Fig. 1. — L'efficience photoélectrique par photon absorbé pour le potassium.

par photon absorbé ne présente plus de maximum et plus de sélectivité spectrale (*fig.* 1) [10].

Une autre expérience de Thomas [9] montre directement que l'effet photoélectrique du K doit être un effet de volume, même près du seuil photoélectrique. C'est la mesure du courant photoélectrique en fonction de l'épaisseur du film pour différentes longueurs d'ondes de la lumière incidente. Après une augmentation linéaire, le courant photoélectrique passe à une saturation quand l'épaisseur dépasse une épaisseur L qui est intréprétée comme profondeur d'émission des photoélectrons du métal considéré. Cette profondeur d'émission est de l'ordre de 1 000 Å près du seuil photoélectrique et de l'ordre de 10 Å pour des électrons plus énergiques de 2 eV (*fig.* 2). Ceci est interprété par Thomas [9]

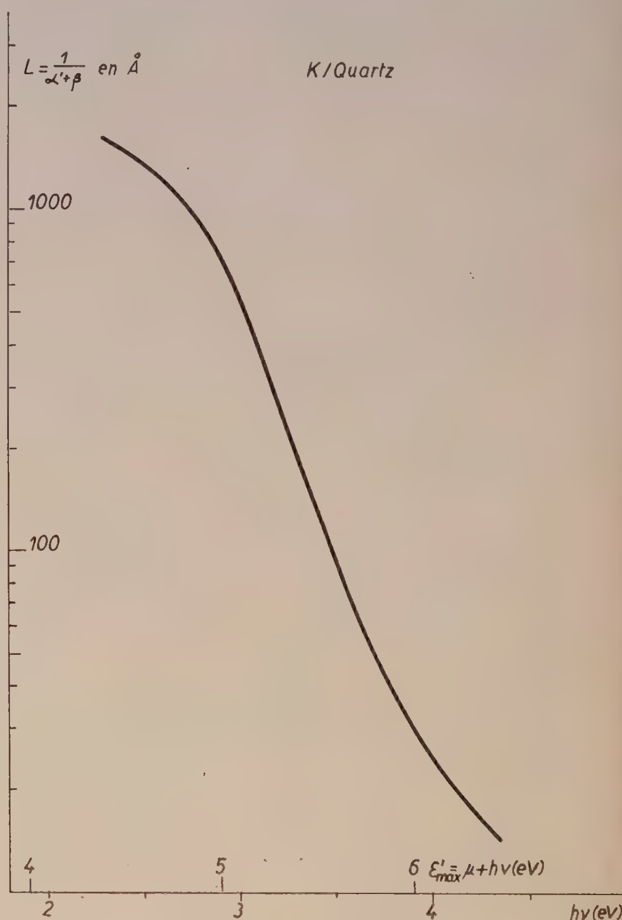


Fig. 2. — La profondeur d'émission des photoélectrons pour le potassium.

par le passage des interactions individuelles aux interactions collectives entre les électrons de la bande de conduction du métal. Nous y reviendrons plus loin.

La dépendance spectrale de la profondeur d'émission permet à Mayer et Thomas [10] d'expliquer aussi la sélectivité spectrale pour la lumière polarisée dans le cas de films plus épais, ce qui n'est pas explicable par les théories de l'effet de surface.

Enfin les courbes de distribution d'énergie des photoélectrons présentent des anomalies qui ne peuvent être expliquées par un effet de surface.

La dépendance de la température de la distribution d'énergie près de l'énergie maximum, est bien expliquée par la théorie de Fowler et DuBridge [6] comme l'indiquent par exemple les mesures de Roehr [22].

Mais on observe une dépendance de l'épaisseur du film métallique qui se caractérise de la façon suivante : Pour des films minces on trouve beaucoup d'électrons avec une énergie voisine de l'énergie maximum $E_{Max} = \mu + h\nu$ et souvent pas d'électrons de faible énergie. Plus l'épaisseur du film augmente, plus le nombre d'électrons lents augmente. Ceci résulte des expériences sur Pt, Al, Cu, Pd et Ag [23] ainsi que sur K [11, 24] (*fig.* 3).

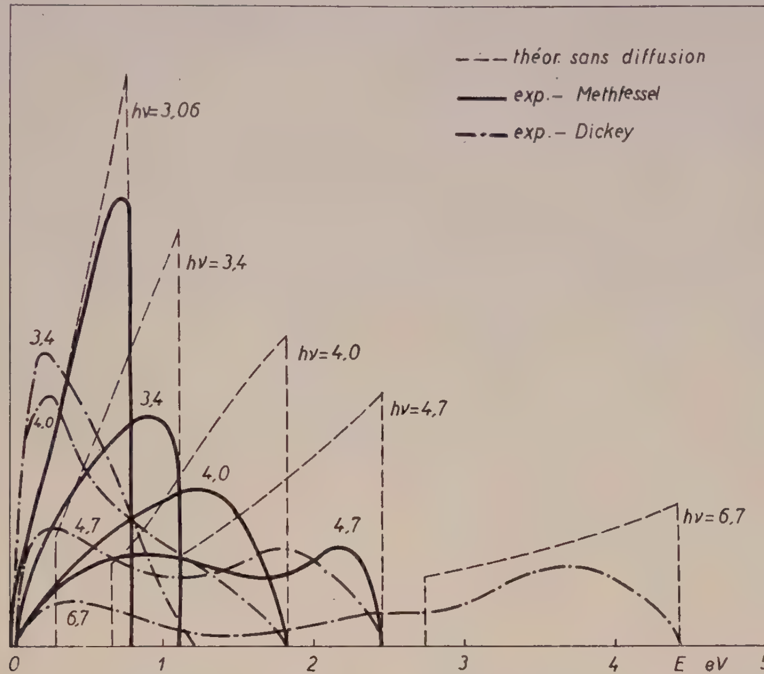


FIG. 3. — La distribution d'énergie des photoélectrons pour le potassium.

Ceci ne peut être expliqué que par l'influence des diffusions sur les électrons excités dans le volume du métal.

Théorie de l'effet photoélectrique de volume. — Dans la théorie de l'effet photoélectrique de volume on doit tenir compte des points suivants : 1) L'intensité de la lumière dans le métal, à une distance x de la surface, 2) la probabilité de photoexcitation d'un électron de la bande de conduction du métal d'énergie et d'impulsion donnée, 3) la probabilité que cet électron excité atteigne la surface avec une énergie donnée et 4) la probabilité que cet électron puisse passer à travers la surface du métal.

A. DISTRIBUTION SPECTRALE ET DISTRIBUTION D'ÉNERGIE POUR DES FILMS MINCES. — En considérant des films minces, nous supposons qu'on peut négliger l'effet des diffusions des électrons dans le métal. Il suffira donc de tenir compte de la probabilité de photoexcitation et du pouvoir de transmission D de la surface pour calculer l'efficience par photon absorbé. Nous admettrons l'hypothèse de la transmission totale :

$$D(\varepsilon_x) = 1 \quad \text{pour} \quad \varepsilon_x > W$$

et

$$D(\varepsilon_x) = 0 \quad \text{pour} \quad \varepsilon_x < W$$

où ε_x est la « composante normale » de l'énergie cinétique.

Nous avons montré [12] que dans les métaux alcalins, la photoexcitation se fait uniquement par transitions obliques. Ce sont des transitions où l'électron est excité en même temps qu'il subit une réflection de Bragg sur le réseau cristallin, avec

$$\varepsilon(k) \to \varepsilon'(k') = \varepsilon(k) + h\nu$$

et

$$\bar{k} \to \bar{k}' = \bar{k} + \bar{G} \quad \text{avec} \quad \bar{G} = \frac{2\pi}{a}\bar{n},$$

où $\bar{n}$ est un triple de nombres entiers. La plus petite valeur permise pour n est $\sqrt{2}$. Nous avons vu aussi que le seuil de l'absorption de photoexcitation est donné par

$$h\nu_1 = 150\ (n^2/a^2)\ (1 - 1{,}24/n)$$

et que $h\nu_1$ est inférieur au seuil photoélectrique. Pour le K on a par exemple $h\nu_1 = 1{,}35$ eV, $W = 4{,}35$ eV, $\mu = 2{,}1$ eV et $h\nu_0 = 2{,}25$ eV. Mais ceci ne démontre pas encore que l'effet photoélectrique de volume apparaît dès le seuil $h\nu_0$. En effet, à cause de l'addition vectorielle $\bar{k}' = \bar{k} + \bar{G}$, la distribution des vitesses des électrons excités sera anisotrope par rapport à $\bar{G}$ et donc par rapport à la surface si l'orientation de $\bar{G}$ est définie par rapport à la surface. Or il faut que l'énergie cinétique normale à la surface $\varepsilon'_x \geqslant W$ pour que l'électron excité puisse être émis.

Tamm et Schubin [8] avaient supposé que $\bar{n} = (1, 0, 0)$ et que la surface d'émission était perpendiculaire à $\bar{G}$. Il en résultait pour le K un seuil $h\nu'_0 = 3{,}2$ eV pour l'effet photoélectrique de volume.

Fan [25] tient compte de la plus petite valeur permise pour $n = \sqrt{2}$ et calcule $h\nu'_0$ pour des surfaces (1, 0, 0) (1, 1, 0) ou (1, 1, 0) si $\bar{n} = (1, 1, 0)$. Il trouve que $h\nu'_0$ est beaucoup plus près de $h\nu_0$. On a par exemple pour le K : $h\nu'_0 = 2{,}35$ eV pour la surface (1, 1, 1). Ceci n'excluait donc pas un effet de surface près du seuil photoélectrique.

Le pas décisif a été fait par Mayer et Thomas [10] qui remarquent que les irrégularités de la surface, surtout dans le cas des films obtenus par évaporation, suffisent pour permettre un effet de volume dès le seuil photoélectrique normal, $h\nu_0 = W - \mu$.

Il est intéressant d'examiner un tableau comparatif des valeurs expérimentales du seuil photoélectrique et du travail d'extraction thermoionique $\Phi = W - \mu = h\nu_0$. En plus des grandes fluctuations des valeurs du seuil photoélectrique, on observe que souvent la « meilleure » valeur du seuil photoélectrique est supérieure à la « meilleure » valeur du travail d'extraction. Malgré les difficultés expérimentales, dues aux contaminations, ceci semble indiquer qu'on peut observer un seuil photoélectrique $h\nu'_0 \geqslant h\nu_0$, ce qui serait normal pour un monocristal avec une surface régulière.

Si on admet une distribution isotrope en $\bar{G}$ par rapport à la surface, on obtient pour la probabilité qu'un électron excité, ayant une énergie ε' puisse être émis, c'est-à-dire que son énergie normale $\varepsilon'_x \geqslant W$:

$$p(\varepsilon') = \frac{1}{2}\left(1 - \sqrt{W/\varepsilon'}\right).$$

Remarquons que

$$p \simeq \frac{\varepsilon' - W}{4W} \simeq \frac{E}{4W} \simeq \frac{h\nu - h\nu_0}{4W}$$

près du seuil photoélectrique et que $p \to 1/2$ pour ε' et $h\nu \to \infty$.

Nous savons [12] que dans les transitions obliques on a un spectre d'énergie

$$\varepsilon_0 + h\nu \leqslant \varepsilon' \leqslant \mu + h\nu$$

pour les électrons excités et

$$E_0 = \varepsilon_0 + h\nu - W \leqslant E \leqslant E_m = \mu + h\nu - W$$

pour les photoélectrons émis (sans diffusions) avec $E \geqslant 0$ et

$$\varepsilon_0 = \frac{h\nu_G}{4}\left(1 - \frac{h\nu}{h\nu_G}\right); \qquad h\nu_G = \frac{\hbar^2 G^2}{2m}.$$

La figure 4 donne E_m, E_0, W, μ et ε_0 en fonction de $h\nu$ pour le potassium.

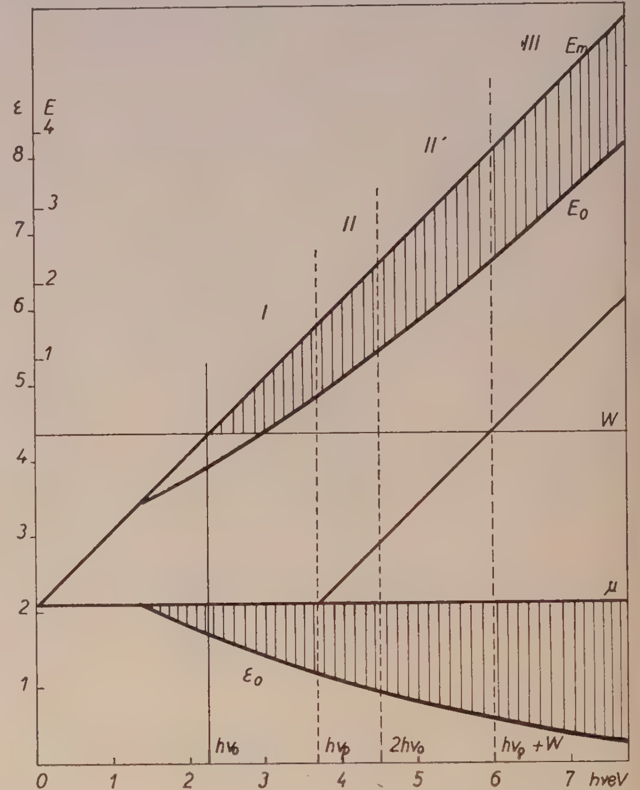


Fig. 4. — Les énergies qui interviennent dans la description de la photoexcitation et de l'émission photoélectrique du potassium.

On n'aura donc pas d'électrons lents pour $E_0 > W$. Le courant photoélectrique sera donné par

$$i(\nu) = e \int \frac{2}{8\pi^3} s(\bar{k}, \nu) . p . \mathrm{d}^3 k \quad \text{(en c/sec.cm}^3\text{)}$$

c'est-à-dire par l'intégrale du nombre d'électrons par cm³ et par élément de volume de l'espace des k, multiplié par la probabilité de transition par seconde et par cm³ pour un électron dont le nombre d'onde initial est $\bar{k}$ pour la lumière de fréquence ν, multiplié par la probabilité d'émission (en absence de diffusions et avec l'hypothèse de la transmission totale de la surface).

Pour la valeur de $s(\bar{k}, \nu)$ Mayer et Thomas se basent sur le résultat de Butcher [26], affirmant que

cette probabilité de photoexcitation est indépendante de l'énergie des électrons qui peuvent être excités. Nous avons montré [12] que cette probabilité est proportionnelle en réalité à ε'. Nous avions trouvé

$$s(\bar{k}, \nu) = 2\pi\hbar^3 \left(\frac{eE}{mh\nu a^3}\right)^2 |M|^2 \delta(\Omega)$$

$$|M|^2 = \frac{a^6}{2}\left(\frac{U_G}{h\nu}\right)^2 k'^2 \quad \text{et} \quad d^3 k\, \delta(\Omega) = \frac{m 2\pi}{\hbar^2 G} k_\perp \, dk_\perp$$

on a donc

$$i(\nu) = \frac{e^3 E^2 \hbar U_G^2}{2m\pi\, G(h\nu)^4} \int k'^2 . p . k_\perp \, dk_\perp$$

ou

$$i(\nu) = \frac{e^3 E^2 m U_G^2}{\hbar^3 \pi\, G(h\nu)^4} \int_{W+E_0}^{W+E_m} \varepsilon' . p(\varepsilon') . d\varepsilon' \text{ pour } E_0 \geqslant 0.$$

Pour $E_0 < 0$, il suffit de remplacer E_0 par 0, évidemment $E_m \geqslant 0$. On obtiendra l'efficience quantique par photon absorbé, en divisant $i(\nu)$ par $e\alpha I$ où α est le coefficient d'amortissement et I le nombre moyen de photons par sec et cm² dans le faisceau incident. Mais l'énergie absorbée par sec et par cm³ est donnée par

$$\sigma E^2 = \alpha I h\nu$$

où σ est le coefficient de conductibilité qui est donné par [12]

$$\sigma(\nu) = \frac{h\nu}{E^2}\int \frac{2}{8\pi^3} s(\bar{k}, \nu)\, d^3 k = \frac{e^2 m U_2^G}{\hbar^3 \pi\, G(h\nu)^3} \int_{W+E_0}^{W+E_m} \varepsilon' \, d\varepsilon$$

avec $E_0 \geqslant 0$. On obtient donc pour l'efficience quantique par photon absorbé

$$Y_a(\nu) = \frac{1}{2}\left[1 - \frac{2}{3} W^{1/2} \frac{(W + E_m)^{3/2} - (W + E_0)^{3/2}}{(W + E_m)^2 - (W + E_0)^2}\right].$$

Près du seuil photoélectrique on peut poser $p = E/4W$, alors

$$Y_a(\nu) = \frac{1}{4W} \frac{2/3(E_m^3 - E_0^3) + W(E_m^2 - E_0^2)}{(E_m^2 - E_0^2) + 2W(E_m - E_0)}.$$

Dans ces deux formules $E_0 \geqslant 0$ au numérateur.

La courbe $Y_a(\nu)$ ainsi obtenue pour le K est comparée à la figure 1 avec les points expérimentaux de Mayer et Thomas [10].

La distribution d'énergie est simplement donnée par l'intégrant de $i(\nu)$. Donc

$$N(E, \nu) = \frac{2e^3\, m I U_G^2}{c\hbar^3\, G(h\varepsilon)^3} (E + W)\left(1 - \sqrt{\frac{W}{E + W}}\right)$$

et près du seuil photoélectrique

$$E(E, \nu) \sim E(E + W)$$

avec

$$E_0 \leqslant E \leqslant E_m \quad \text{et} \quad E \geqslant 0.$$

Les courbes théoriques pour la distribution d'énergie en absence de diffusions sont données pour le K à la figure 3, en même temps que les courbes expérimentales de Methfessel [11] et de Dickey [24]. Ces courbes expérimentales montrent l'influence des diffusions des électrons excités dans le métal, dont l'importance dépend de l'épaisseur du film.

Les résultats ainsi obtenus ne diffèrent pas énormément de ceux de Mayer et Thomas pour la distribution spectrale et de Methfessel pour la distribution d'énergie, bien que ceux-ci n'utilisent qu'une approximation de l'expression de la probabilité de photoexcitation [12].

B. Distribution spectrale dans l'approximation monocinétique. — On obtient des formules très simples et très utiles, permettant de mieux voir l'influence des différents facteurs physiques, si on suppose que tous les électrons excités sont sensiblement la même énergie, sachant que l'énergie maximum est $E_m + W = \mu + h\nu$. Dans le métal l'intensité lumineuse I qui donne le nombre de photons par sec et par cm² varie suivant

$$I = g I_0 \, e^{-\alpha' x}$$

où I_0 est l'intensité lumineuse incidente, g est un facteur qui dépend de la polarisation de la lumière et de l'angle d'incidence ainsi que de l'épaisseur du film et des constantes optiques du film et du support. C'est ce facteur qui est responsable du maximum et de la sélectivité spectrale pour la lumière polarisée. α' est le coefficient d'absorption total, incluant l'absorption de conductibilité et l'absorption de photoexcitation. Comme le nombre de photons absorbés par sec et par cm³ à la distance x de la surface est $\alpha' I$, on aura pour un film d'épaisseur d pour le nombre total de photons absorbés

$$g I_0 (1 - e^{-\alpha' d}) = A(d, \nu)\, I_0$$

$A(d, \nu)$ sera le pouvoir d'absorption du film.

Si α est le coefficient d'absorption pour la photoexcitation seule, on aura pour le nombre d'électrons excités par sec et par cm³ à la distance x de la surface αI.

Nous savons que la probabilité qu'un électron excité avec une énergie $\varepsilon' = \varepsilon + h\nu$ puisse sortir en absence de diffusions, est donné par

$$D . p = D . \frac{1}{2}\left(1 - \sqrt{W/\varepsilon'}\right)$$

si la distribution des vitesses des électrons excités est isotrope par rapport à la surface, c'est-à-dire si on n'a pas un monocristal avec une surface régulière ou si la distribution des vitesses devient isotrope à la suite de diffusions inélastiques. La transmission de la surface $D = 0$ quand l'énergie normale de l'électron arrivant à la surface est infé-

rieure à la hauteur de la barrière de potentiel à la surface.

Nous introduisons maintenant l'influence des diffusions, en supposant qu'on puisse définir une « profondeur de sortie » des électrons excités, telle que sur cette distance moyenne l'électron excité ait perdu trop d'énergie pour qu'il puisse encore passer la barrière de potentiel à la surface. En admettant une loi exponentielle, on aura pour la probabilité de sortie d'un électron excité à la distance x de la surface

$$Dp\, e^{-\beta x}$$

où $1/\beta$ est la profondeur de sortie, qui dépend de ε'. Dans la suite nous admettrons l'hypothèse de la transmission totale, ce qui permet d'écrire $D = 1$ dans cette expression.

Pour obtenir une expression simple du courant photoélectrique nous supposons maintenant que les électrons excités par la lumière de fréquence ν correspondent à une énergie moyenne $\overline{\varepsilon'}$ ce qui est assez justifié puisque de toute façon

$$W + E_m \leqslant \varepsilon' \leqslant W + E_0.$$

Il en résulte que

$$i(d, \nu) = \int_0^d e(\alpha\, gI_0\, e^{-\alpha' x})\, p\, e^{-\beta x}\, dx$$

ou

$$i(d, \nu) = \frac{e\, \alpha\, gI_0\, p}{(\alpha + \beta)} [1 - e^{-(\alpha' + \beta) d}].$$

Le courant photoélectrique augmente d'abord linéairement avec d, pour atteindre ensuite une saturation quand l'épaisseur du film est de l'ordre de grandeur de la « profondeur d'émission » $L = 1/\alpha' + \beta$ qui est plus grande que la « profondeur de sortie » $1/\beta$. Les mesures de Thomas [9] pour le K donnant $i(\nu)$ en fonction de d correspondent bien à la formule $i(d, \nu)$ et permettent de déterminer la profondeur d'émission L en fonction de $h\nu$ (*fig.* 2). Remarquons que la profondeur d'émission varie entre 15 et 1 500 Å tandis que la profondeur de photoexcitation $1/\alpha$ est de l'ordre de 4 700 Å, puisque $\sigma \simeq 5\ 10^{13}$ sec^{-1} pour K dans la même bande de fréquence.

L'efficience quantique par photon absorbé s'obtient en divisant $i(d, \nu)$ par $eA(d, \nu)\, I_0$:

$$Y_a(d, \nu) = \frac{\alpha}{(\alpha' + \beta)}\, p \left[\frac{1 - e^{-(\alpha' + \beta) d}}{1 - e^{-\alpha' x}}\right].$$

Pour des films métalliques minces, on a

$$Y_a = \frac{\alpha}{\alpha'}\, \rho \sim \rho$$

en effet $\alpha' \simeq \alpha$, puisque l'absorption de conductibilité est négligeable par rapport à l'absorption de photoexcitation [27]. De toute façon nous aurons toujours la valeur maximum de Y_a d'après

$$Y_a \leqslant p(\overline{\varepsilon'}) \leqslant p(\mu + h\nu)$$

donc

$$Y_a \max = \frac{1}{2}\left(1 - \sqrt{\frac{W}{\mu + h\nu}}\right).$$

Pour des fréquences élevées la moitié des photoélectrons se dirigent vers la surface et

$$Y_a \max \to 1/2.$$

Cette courbe Y_a max est représentée à la figure 1 pour le potassium. On voit qu'elle est faiblement supérieure aux points expérimentaux. L'écart près du seuil photoélectrique s'explique principalement par l'approximation monocinétique que nous avons faite ici, puisque précédemment nous avons obtenu une courbe qui est en meilleur accord avec les points expérimentaux, en tenant compte de la distribution d'énergie des électrons excités.

Le fait que les points expérimentaux ont tendance à dépasser la courbe Y_a max au delà de 4 eV doit être interprété par l'existence d'une émission secondaire, qui devient possible quand

$$\varepsilon' = \mu + h\nu \geqslant W + h\nu_0$$

donc quand $h\nu \geqslant 2h\nu_0$. En effet jusqu'à présent nous avons seulement tenu compte d'une absorption possible des photoélectrons et non pas d'une création secondaire. Pour des films métalliques très épais, on a

$$Y_a = \frac{\alpha}{\alpha' + \beta}\, p$$

Y_a sera donc déterminé par le rapport de la profondeur d'émission L à la profondeur de photoexcitation. La variation rapide de L avec $h\nu$ doit donc se refléter sur le comportement de Y_a.

C. L'efficience par photon incident est une grandeur inadéquate. — Tous les résultats expérimentaux concernant la distribution spectrale sont normalisés pour une même intensité lumineuse incidente I_0, ce qui revient à donner l'efficience quantique par photon incident $I = i/eI_0$. L'expression obtenue pour $i(d, \nu)$ permet d'écrire

$$Y(d, \nu) = \frac{\alpha g p}{(\alpha' + \beta)}\, p[1 - e^{-(\alpha' + \beta) d}].$$

Nous avons donc

$$Y_a = p \text{ et } Y = (gd\alpha)p$$

pour des films minces

$$Y_a = (L\alpha)\, p \text{ et } Y = (gL\alpha)\, p.$$

pour des films très épais.

Nous voyons que la valeur de Y dépend de g et de l'épaisseur du film quand celle ci est inférieure

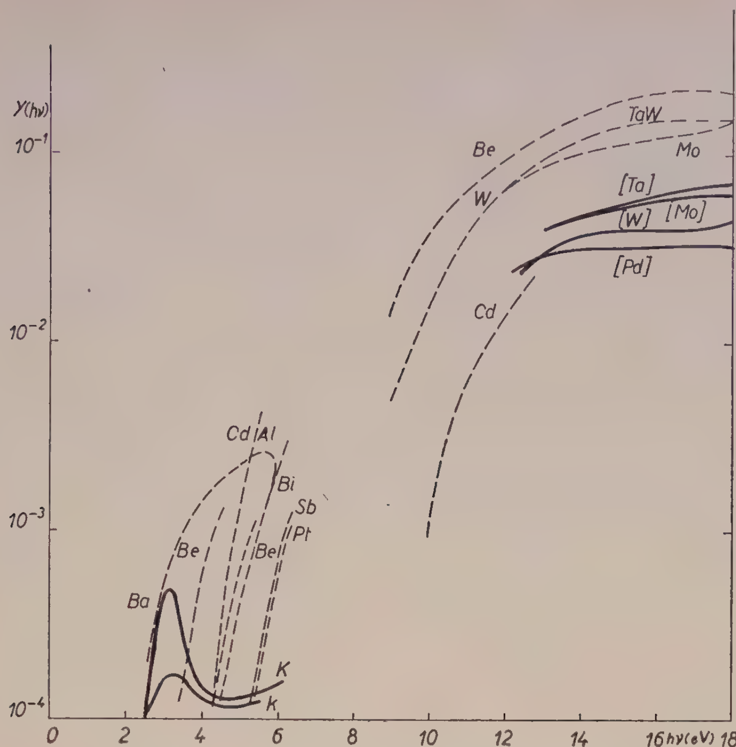


Fig. 5. — La distribution spectrale dans le visible et l'ultraviolet lointain, observée pour une série de métaux. L'efficience par photon incident est rapportée sur une échelle logarithmique.

à *L*. Ceci explique tout naturellement les divergences entre les courbes $Y(\nu)$ obtenus par différents auteurs [20] (*fig.* 5).

Il est très regrettable que tant de travaux expérimentaux, faits avec grand soin et beaucoup d'ingéniosité et de patience ne nous ont pû fournir de meilleures données sur l'effet photoélectrique lui-même, puisque les facteurs g et d restent inconnus. Cela est évidemment dû au fait qu'on a considéré l'effet photoélectrique comme un effet de surface et non pas comme un effet de volume.

Il est cependant intéressant de vérifier les ordres de grandeur. On a $Y \simeq 10^{-3}$ à 10^{-4} (*fig.* 5) et $Y_a \simeq 10^{-1}$ à 10^{-2} (le maximum est 0,5). On sait que $g \simeq 1/2$ et $\alpha' \simeq 2\ 10^4$ cm^{-1} et qu'en général $d \simeq 100$ Å. Ceci donne bien $Y = Y_a\ 10^{-2}$. Cet argument montre aussi que l'effet photoélectrique des métaux autres que les métaux alcalins est sans doute aussi un effet de volume.

D. La théorie de Fowler-DuBridge. — Examinons comment la théorie de l'effet de volume peut être rapprochée de la théorie de Fowler-DuBridge qui est en bon accord avec l'expérience pour l'ensemble des métaux. Nous avions obtenu pour le courant photoélectrique à 0 °K

$$i(\nu) = \frac{1}{(h\nu)^3} \int_{W+E_0}^{W+E_m} \varepsilon' p(\varepsilon')\, d\varepsilon'.$$

Mais près du seuil photoélectrique $p = E/4W$ est la seule grandeur rapidement variable. De plus à 0 °K on ne peut exciter que des électrons dont l'énergie $W - h\nu \leqslant \varepsilon \leqslant \mu$, tandis que plus loin du seuil on a $\varepsilon_0 \leqslant \varepsilon \leqslant \mu$. Donc

$$i(\nu) \sim \int_{W-h\nu}^{\mu} (\varepsilon + h\nu - W)\, d\varepsilon \sim (h\nu - h\nu_0)^2.$$

On obtient le même résultat par la théorie de Fowler-DuBridge à 0 °K, en remarquant que le nombre d'électrons qui se meuvent dans la direction normale à la surface est $N(\varepsilon_x, 0) \simeq (\mu - \varepsilon_x)$ et que

$$i(\nu) \sim \int_{W-h\nu}^{\mu} (\mu - \varepsilon_x)\, d\varepsilon_x \sim (h\nu - h\nu_0)^2.$$

On voit que dans la théorie de Fowler-DuBridge on considère le nombre d'électrons qui se meuvent vers la surface avec une énergie normale ε_x donnée et qu'on suppose être égal au nombre d'électrons excités qui se meuvent vers la surface avec une énergie normale $\varepsilon_x + h\nu = \varepsilon'_x$. On demande alors que $\varepsilon'_x \geqslant W$ pour que cet électron excité puisse sortir du métal.

Dans la théorie de l'effet de volume, la distribution spectrale est déterminée par p qui donne la proportion d'électrons excités avec une énergie normale $\varepsilon'_x \geqslant W$.

C'est également cette probabilité de sortie qui intervient dans la théorie de J. J. Thomson [4], aboutissant au même résultat, comme nous l'avons vu dans l'introduction.

La théorie de Fowler-DuBridge peut donc être regardée comme une théorie d'effet de volume, avec les approximations suivantes : 1) Elle n'est valable que dans le voisinage du seuil photoélectrique, parce qu'on néglige la variation de la probabilité de photoexcitation et du facteur g, responsable dans certains cas du maximum et de la sélectivités spectrale pour la lumière polarisée. On néglige aussi l'influence de la diffusion des photoélectrons dans le métal ; mais cette approximation semble être valable près du seuil photoélectrique, où $h\nu \leqslant h\nu_P$ et $h\nu \geqslant 2h\nu_0$. Enfin il faut que $\varepsilon_0 \leqslant W - h\nu$. 2) On suppose que la distribution des vitesses des électrons excités soit isotrope comme celle des électrons avant l'excitation. Nous savons que ceci implique qu'on n'ait pas un monocristal avec une surface régulière ou qu'il y ait un grand nombre de diffusions inélastique. C'est d'ailleurs ce qui permet d'écrire que $h\nu_0 = W - \mu$. 3) On fait l'hypothèse de la transmission totale de la surface. 4) Ces simplifications permettent de rendre compte très facilement de l'influence de la température sur la distribution spectrale, puisqu'on se ramène directement à l'influence de la température sur la distribution d'énergie près du niveau de Fermi. 5) Puisqu'on ne détermine pas le coefficient de proportionnalité, on ne doit pas s'occuper de l'influence de l'épaisseur du film.

E. Les transitions verticales. — Nous savons par l'étude de l'absorption optique [12] que la photoexcitation dans les métaux alcalins est due uniquement à des transitions obliques tandis qu'elle est due à des transitions verticales dans les isolants et semiconducteurs. Cette conclusion est confirmée par l'étude de l'effet photoélectrique des métaux. Si on a des transitions verticales, on aura pour le seuil photoélectrique $h\nu_0' = W(k) - \varepsilon(k)$, mais à cause de la périodicité de $\varepsilon(k)$ on a

$$h\nu_0' = \varepsilon(k_w) - \varepsilon(G - k_w)$$

avec

$$\varepsilon(k_w) = W.$$

Donc

$$h\nu_0' = 2\sqrt{Wh\nu_G} - h\nu_G.$$

Le calcul donnera pour les métaux alcalins toujours $h\nu_0' > h\nu_0 = W - \mu$. Ceci est d'ailleurs simplement une conséquence du fait que le seuil d'absorption $h\nu_1 < h\nu_0$. Il en résulte que les électrons excités à partir du niveau de Fermi ne peuvent pas sortir du métal. On ne pourrait donc pas observer un effet de température comme celui qu'on observe expérimentalement et qui est décrit par la théorie de Fowler-DuBridge.

Il y a un autre désaccord avec la théorie de Fowler-DuBridge, parce qu'on suppose dans cette théorie que $\varepsilon_x \geqslant W - h\nu$, or dans le cas de deux paraboles opposées pour le diagramme d'énergie (cas des métaux alcalins) on a $0 \leqslant \varepsilon_x \leqslant W - h\nu_0'$ et $p = 1/2$ pour les électrons qui peuvent sortir.

Enfin en absence de diffusions, on devrait avoir presque des fonctions δ pour la distribution des photoélectrons à une fréquence donnée.

Ces arguments semblent écarter également la possibilité de transitions verticales pour des métaux autres que les métaux alcalins.

Interactions individuelles et collectives entre électrons. — Thomas [9] a mis en évidence qu'on doit tenir compte dans l'effet photoélectrique des interactions entre l'électron excité dans le métal et les autres électrons de la bande de conduction de celui-ci, Ces intéractions sont accompagnés d'une perte d'énergie de l'électron excité, celui-ci peut donc éventuellement être absorbé dans le métal si la perte d'énergie est telle qu'il ne peut plus passer la barrière de potentiel à la surface. Pines et Boehm [28] ont montré que les interactions coulombiennes entre les électrons peuvent être divisées en « interactions individuelles » et « interactions collectives ».

Les interactions collectives correspondent à l'excitation d'oscillations de plasma. Cette excitation est quantifiée puisqu'on doit fournir l'énergie $h\nu_P$ pour produire un « plasmon ». ν_P est la fréquence d'oscillation du plasma, très voisine de la fréquence classique

$$\nu_P = (4\pi e^2 n/m)^{1/2}/2\pi$$

où n est la densité d'électrons (libres) dans la bande de conduction.

Les interactions individuelles sont les seules interactions possibles quand l'énergie de l'électron est inférieure à $h\nu_P$. Ces interactions sont décrites par un potentiel de la forme $e^{-\overline{k_c . r}}$ n'agissant que sur des distances de l'ordre de k_c^{-1} soit 1 Å.

Le tableau suivant donne les valeurs de $h\nu_P$ pour quelques métaux

	Li	Na	K	Rb	Cs	
$h\nu_P$ calculé	8,1	6,0	4,4	4,0	3,6	(eV)
$h\nu_P$ optique	8,02	5,91	3,94	3,65	3,27	(eV)
$h\nu_P$ abs. caract.	9,5	5,4	3,8	—	—	(eV)

Pour Ag, Cd, In, Sn, Sb, Te : $h\nu_P = 10$ à 20 eV.

Pour Ti, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn : $h\nu_P = 20$ à 30 eV.

A. Comparaison du libre parcours moyen calculé et observé. — Thomas [9] a calculé le libre parcours moyen pour l'excitation d'un plasmon d'énergie $h\nu_P$ par un électron d'énergie ε' et de nombre d'onde k' :

$$\lambda_C = 4a_B \frac{\varepsilon'}{h\nu_p} \frac{1}{\ln\left(k_c^2/(k' - k'')^2\right)} \quad \text{pour } k'' > k_F$$

et $\lambda_C = \alpha$ pour $k'' < k_F$, puisque l'énergie de l'électron après interaction doit être supérieure au niveau de Fermi (à 0 °K). λ_C est représenté à la figure 6 en fonction de l'énergie ε'. Wolf [29] a calculé le libre parcours moyen entre les collisions individuelles :

$$\lambda_i = 1/n\,\sigma_0(\varepsilon')\left(1 - \frac{7}{5}\frac{\mu}{\varepsilon'}\right)$$

où n est la densité d'électrons (libres) dans la bande de conduction et σ_0 est la section efficace de diffusion s qui est seule à considérer pour des énergies ε' inférieures à 50 eV. Le dernier facteur corrige pour le principe d'exclusion de Pauli, puisqu'il faut que $\varepsilon'' > \mu$. λ_1 ainsi calculé est donné également à la figure 6.

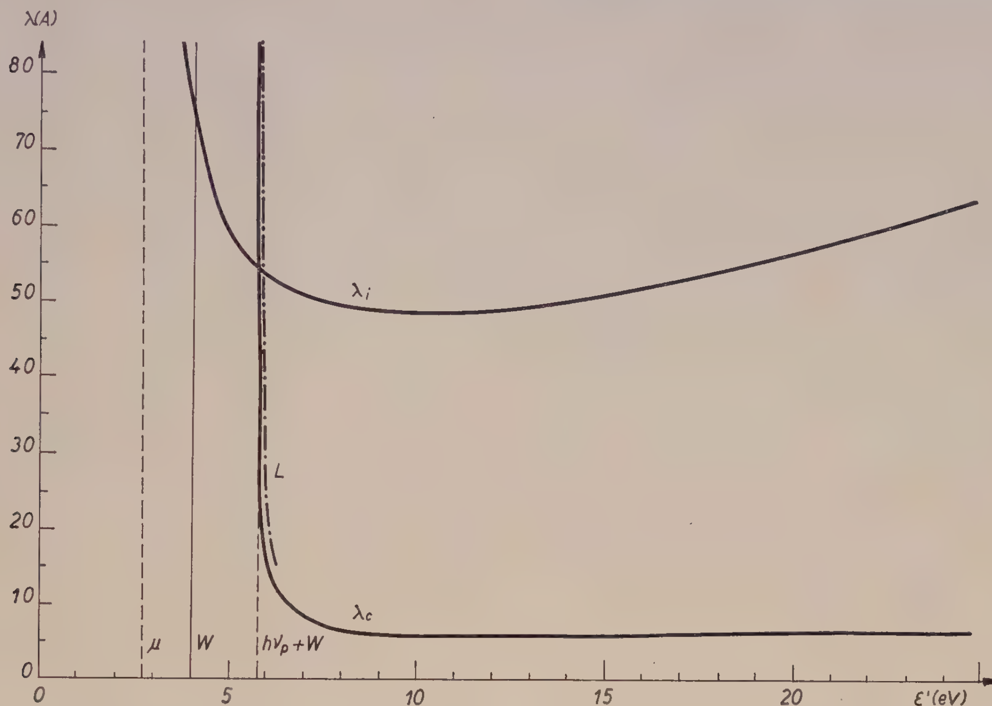


Fig. 6. — Courbes théoriques et expérimentales pour la profondeur d'émission des photoélectrons dans le potassium.

Comparons maintenant ces résultats avec la courbe en trait mixte à la figure 6 qui représente la profondeur d'émission, $L = 1/\alpha' + \beta$ qui varie comme la profondeur de sortie $1/\beta$ qui est le libre parcours moyen pour une perte d'énergie telle que l'électron ne peut plus sortir, donc le libre parcours moyen pour l'absorption de l'électron, qui est supérieur à L. La figure 6 indique un bon accord entre le libre parcours moyen calculé pour les interactions collectives λ_C et le libre parcours moyen observé pour l'absorption de l'électron. Cela est dû au fait qu'un électron qui a excité un plasmon, ne pourra plus sortir du métal, en tout cas pour $h\nu_P \leqslant h\nu \leqslant W + h\nu_P$ (*fig.* 4).

On voit par contre, que près du seuil

$$(h\nu_0 \leqslant h\nu \leqslant h\nu_P)$$

où les interactions individuelles interviennent seules, le libre parcours moyen calculé $\lambda_i \simeq 60$ Å entre les collisions individuelles, tandis que la profondeur d'émission L est de l'ordre de 100 à 1 500 Å. Il semble donc normal d'admettre un grand nombre de collisions, comme le font Thomas [9] et Methfessel [11]. Mais celà suppose que les faibles pertes d'énergie soient les plus probables. Une telle loi serait obtenue pour la diffusion (de Rutherford) sous l'action de forces coulombiennes à longue portée. Mais dans le cas actuel nous avons un potentiel d'interaction à courte portée, ce qui permet de se référer à la théorie du ralentissement des neutrons. Puisque nous avons une diffusion [29] on peut admettre une distribution d'énergie uniforme pour l'électron diffuseur et l'électron diffusé après diffusion. Ceci est démontré [30] pour une particule de vitesse V_1 entrant en collision avec une particule au repos, mais reste vrai aussi quand la seconde particule est en mouvement. On trouve en effet

$$\frac{dW}{dE_1'} = \frac{1}{E_1 - E_2}$$

avec

$$E_2 \leqslant E_1' \leqslant E_1.$$

Puisque seules les énergies initiales E_1 et E_2 interviennent, le principe d'exclusion de Pauli

(E'_1 et $E'_2 > \mu$) ne modifiera pas la distribution d'énergie.

Un calcul simple nous permettra maintenant de nous faire une idée du libre parcours moyen pour l'absorption de l'électron. L'électron primaire d'énergie ε' entre en collision avec un électron de la mer de Fermi. L'électron diffuseur et diffusé auront une distribution d'énergie uniforme entre ε' et μ. La probabilité de sortie d'un électron ($\varepsilon' \geqslant W$) sera donc,

$$R = \frac{\varepsilon' - W}{\varepsilon' - \mu} \leqslant \frac{h\nu - h\nu_0}{h\nu}.$$

En tenant compte de la multiplication secondaire, on aura pour le nombre d'électrons qui peuvent sortir après n collisions

$$N_n = N_{n-1}\, 2R \quad \text{avec} \quad N_0 = 1.$$

Supposons qu'on ait un libre parcours moyen λ_i entre deux collisions individuelles, indépendant de l'énergie (assez valable pour K, d'après la figure 6) Ceci nous permettra de construire rapidement une approximation discontinue de la variation du nombre d'électrons qui peuvent sortir en fonction de la distance parcourue x. Ces courbes correspondent à la loi $P = e^{-\beta x}$ que nous avons admise plus haut pour la probabilité excité à la distance x de la surface puisse sortir du métal. Cette approximation discontinue est donnée à la figure 7 pour différentes valeurs de ε' et $h\nu$, dans le cas de K. Le seuil de l'émission secondaire est $2h\nu_0$ quand $R = 1/2$. Avec $\lambda \simeq 60$ Å, et pour

$$h\nu \leqslant h\nu_P = 3{,}7 \text{ eV},$$

on obtient une valeur maximum pour la profondeur de sortie de l'ordre de 300 Å. De plus cette profondeur de sortie diminue quand l'énergie des photoélectrons diminue. Tout ceci est en contradiction avec les observations expérimentales.

Il semble donc bien que les valeurs calculées pour le libre parcours moyen des interactions individuelles λ_i sont trop petites. Ceci nous conduit aux deux possibilités suivantes.

La valeur de λ_i résulte du calcul de Wolf [29] qui admet un rayon d'action $k_c^{-1} = 0{,}75$ Å. En réalité le rayon d'action devrait être de l'ordre de 0,3 à 0,4 Å. Ceci aurait de l'importance pour la théorie des oscillations de plasma. Notons d'ailleurs qu'un rayon d'action plus court nous rapprocherait encore davantage du modèle des particules indépendantes, qui semble si bien convenir aux électrons de conduction des métaux.

Remarquons que le rayon d'action k_c^{-1} est de l'ordre de 1 Å pour K d'après la formule

$$k_C/k_F = 0{,}47(r_0/a_B)^{1/2}$$

où r_0 est le rayon d'une sphère dont le volume est le volume par électron libre et où a_B est le rayon de Bohr. Mais le rayon d'action n'est pas déterminé univoquement par la théorie. Il a été choisi pour qu'on puisse calculer « exactement » l'énergie de corrélation [31]. D'ailleurs Pines admet la valeur 0,75 Å pour les métaux alcalins et Mott [32] avait trouvé avec la méthode de Thomas-Fermi que le rayon d'action est de l'ordre de $(k_c^{-1})/2$.

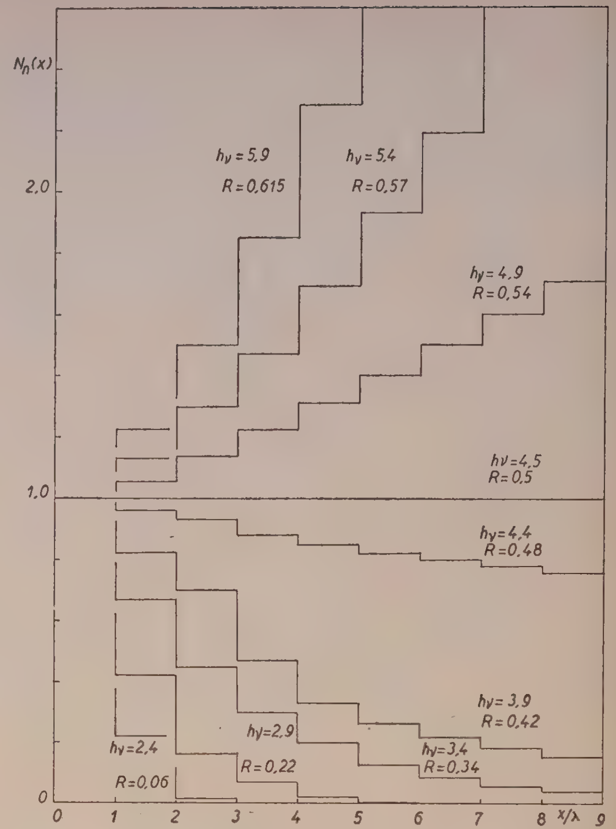


FIG. 7. — Approximation discontinue pour la variation du nombre d'électrons qui peuvent sortir du métal, en fonction de la distance parcourue x. N_n donne le nombre d'électrons qui peuvent sortir après collisions.

Mais nous avons supposé aussi dans les calculs précédents que les électrons de la bande de conduction sont des électrons libres. Nous savons que la photoexcitation, responsable de l'effet photoélectrique, correspond en fait à des transitions bande à bande pour les électrons de la bande de conduction du métal. Il est très probable qu'on doit tenir compte de règles de sélection spéciales dans le calcul de la section efficace des diffusions individuelles, comme dans le traitement de l'émission secondaire par Hachenberg et Brauer [33]. Ceci pourrait également diminuer la section efficace et augmenter λ_i.

B. L'INFLUENCE DES DIFFUSIONS SUR L'EFFET PHOTOÉLECTRIQUE. — 1) $h\nu_0 \leqslant h\nu \leqslant h\nu_P$ (I, *fig.* 4). Dans cette région voisine du seuil photoélectrique, seules les interactions individuelles sont possibles. La distribution d'énergie des photoélectrons (*fig.* 3) est obtenue par la combinaison de la distribution

uniforme pour l'énergie des électrons diffusés avec la probabilité p que ces électrons puissent sortir du métal.

La distribution spectrale de l'efficience quantique par photon absorbé sera pratiquement déterminée par $p(\mu + h\nu)$ pour des films minces. Pour des films épais elle sera plus faible à cause de αL et cela d'autant plus que la fréquence augmente, suite à la variation de L.

2) $h\nu_P \leqslant h\nu \leqslant h\nu_P + W$ (II et II', *fig.* 4). Dans cette région les interactions collectives sont prédominantes et la profondeur d'émission n'est plus que de l'ordre de 10 Å.

Quand l'épaisseur du film augmente on trouve un nombre croissant d'électrons lents, parce que les interactions individuelles qui sont encore permises dans une faible proportion, correspondent à une profondeur d'émission plus grande.

3) $h\nu \geqslant h\nu_P + W$ (III, *fig.* 4). Dans cette région les électrons peuvent encore sortir après avoir excité un plasmon. Comme ces électrons lents ont une grande profondeur d'émission, en observera un très grand nombre d'électrons lents. Ceci doit être observable pour les métaux alcalins ou $h\nu_P + W$ n'est pas trop grand.

4) $h\nu \geqslant 2h\nu_0$. Dans ce cas l'émission secondaire photoélectrique devient possible. L'efficience quantique par photon absorbé peut donc croître au delà de Y_a max $= p(\mu + h\nu)$. Dans la distribution d'énergie on observera un spectre maxwellien d'électrons secondaires.

La grande efficience photoélectrique dans l'ultraviolet lointain. — La figure 5 donne les résultats expérimentaux pour l'efficience quantique Y par photon incident pour quelques métaux, en échelle logarithmique. Dans le visible l'efficience Y est de l'ordre de 10^{-3}, tandis qu'elle est de l'ordre de 10^{-1} dans l'ultraviolet lointain. Cette efficience étonnamment grande dans l'ultraviolet lointain a été observée par Hinteragger [34], Baker [35], Walker, Wainfan et Weissler [36]. Les courbes en trait plein avec indications entre crochets correspondent à des métaux qui ont subi un long traitement thermique.

Jusqu'à présent ces données expérimentales ont été interprétées d'après les suggestions de Tamm et Schubin [8] qui supposent un effet de surface près du seuil photoélectrique et un effet de volume dans l'ultraviolet. L'effet de surface, impliquant un maximum, serait séparé de l'effet de volume par un minimum, comme cela semblait apparaître dans le cas de K (*fig.* 5) et de Na. Cette idée fut renforcée par le fait de reporter la distribution spectrale Y sur une échelle linéaire. Ceci donne en effet l'impression optique d'un second seuil photoélectrique dans l'ultraviolet, comme on le supposait pour l'effet de volume.

Hinteregger [34] est le seul auteur qui a essayé d'expliquer l'effet photoélectrique dans l'ultraviolet lointain, il suppose pour cela l'excitation d'électrons provenant d'un niveau ou d'une mince bande d'énergie située plus bas que la bande de conduction, ce qui donnerait lieu à un second seuil photoélectrique. Comme la probabilité de photoexcitation augmente pour des électrons de plus en plus fortement liés, il serait normal d'observer une efficience aussi grande. Hinteregger estime alors la distribution spectrale en posant $Y = Dp$, en supposant que chaque photon incident produit un électron excité et qu'on puisse négliger les effets d'absorption des électrons et d'émission secondaire photoélectrique. Mais on voit, qu'il a identifié W et $h\nu_0$ dans l'expression de $p(\varepsilon')$, or Be, pour lequel il fait ce calcul, a deux électrons de valence, donc $\mu = 14{,}3$ eV, comme $h\nu_0 = 3{,}7$ eV, on a $W = \mu + h\nu_0 = 18$ eV. Nous voyons donc aussi que les photoélectrons pour $h\nu \geqslant 9{,}2$ eV, qui serait le « second seuil photoélectrique », ne peuvent provenir d'une bande inférieure à la bande de conduction puisque $W > 9{,}2$ eV. Au contraire ces électrons proviennent bien de la bande de conduction.

Cette grande efficience photoélectrique dans l'ultraviolet s'explique très simplement dans le cadre de la théorie de l'effet de volume que nous

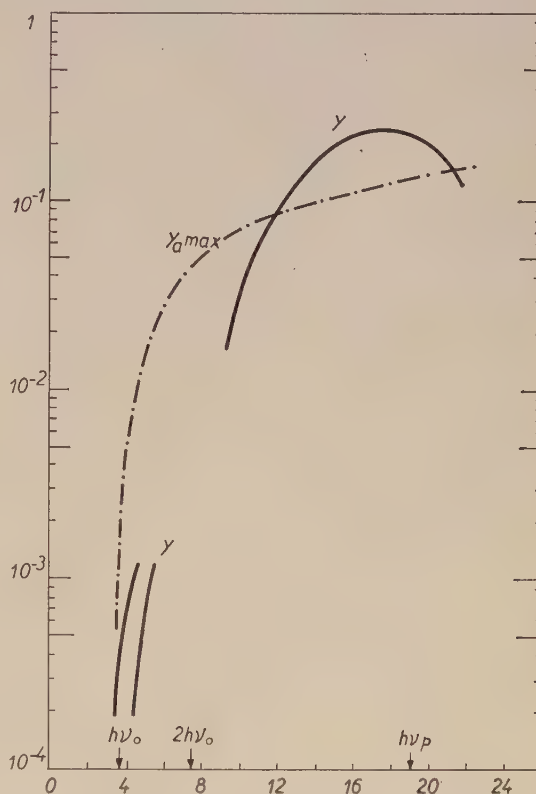


Fig. 8. — Courbes expérimentales de l'efficience photoélectrique Y pour le Be et la courbe théorique

$$Y_a \max = (\mu + h\nu).$$

En abscisse, $h\nu$ en eV.

avons développée. La figure 8 donne les courbes expérimentales pour le Be ainsi que la courbe

$$Y_a \max = p(\mu + h\nu)$$

en trait mixte. Dans l'ultraviolet lointain Y_a max tend vers 1/2. D'autre part l'efficience $Y = Y_a g$ pour des films épais et $Y = Y_a g\alpha' d$ pour des films minces. On ne peut donc pas pousser plus loin la comparaison quantitative mais l'accord des ordres de grandeurs est excellent. Ceci prouve que l'effet photoélectrique dans l'ultraviolet constitue le prolongement normal de l'effet photoélectrique pour la lumière visible, ce qui apparaît d'ailleurs assez bien sur le diagramme logarithmique.

Nous pouvons dire plus pour le Be, en effet pour $h\nu \geqslant 2h\nu_0 = 7{,}4$ eV l'émission secondaire photoélectrique devient possible et augmente quand $h\nu$ augmente. Ainsi on observe que Y dépasse la courbe Y_a max pour $h\nu > 12$ eV.

D'autre part les interactions collectives interviennent à partir de $h\nu \geqslant h\nu_P = 19$ eV. La multiplication secondaire est donc diminuée et beaucoup d'électrons seront absorbés. On voit en fait que la courbe Y redescend.

Ceci est encore confirmé par les courbes de distribution d'énergie des photoélectrons du Be pour $h\nu = 16{,}8$ et $21{,}2$ eV, mesurées par Hinteregger [34] En effet pour 16,8 eV, presque tous les électrons sont des électrons lents, à cause de l'émission secondaire. Par contre pour 21,2 eV la multiplication secondaire est moins importante, ce qui fait qu'on trouve moins d'électrons lents.

Nous remercions M. le Pr De Hemtinne, Directeur du Centre de Physique Nucléaire de Louvain, qui nous a donné la possibilité d'entreprendre et de terminer ce travail, qui est la prolongation de notre étude expérimentale sur l'influence de la température sur les photomultiplicateurs [37].

Manuscrit reçu le 23 septembre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Hertz (H.), *Ann. Physique*, 1887, **31**, 983.
[2] Einstein (A.), *Ann. Physique*, 1905, **17**, 132.
[3] Hughes DuBridge, Photoelectric Phenomena, 1932.
[4] Thomson (J. J.), *Phil. Mag.*, 1926, **2**, 674.
[5] Fowler (R. H.), *Phys. Rev.*, 1931, **38**, 45.
[6] DuBridge, New Theories of the Photoelectric Effect, Paris, 1935.
[7] Meessen (A.), *J. Physique Rad.*, 1959, **20**, 519.
[8] Tamm Schubin, *Z. Physik*, 1931, **68**, 97.
[9] Thomas (H.), *Z. Physik*, 1957, **147**, 395.
[10] Mayer (H.) et Thomas (H.), *Z. Physik*, 1957, **147**, 419.
[11] Methfessel (S.), *Z. Physik*, 1957, **147**, 442.
[12] Meessen (A.), *J. Physique Rad.*, 1961, **22**, 135,
[13] Froehlich (H.), *Ann. Physique*, 1930, **7**, 103.
[14] Mitchell (K.), *Proc. Roy. Soc.*, 1934, A **146**, 442 ; 1936, **153**, 513.
[15] Myers, *Phys. Rev.*, 1936, **49**, 938.
[16] Houston, *Phys. Rev.*, 1937, **52**, 1047.
[17] Machinson, *Proc. Roy. Soc.*, 1937, A **162**, 367 ; *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 1908.
[18] Buckingham, *Phys. Rev.*, 1950, **80**, 704.
[19] Bardeen (J.), *Phys. Rev.*, 1940, **58**, 727.
[20] Weissler (G. L.), *Handb. Physik*, 1956, XXI.
[21] Ives Briggs, *Phys. Rev.*, 1931, **38**, 1209, 1477.
[22] Roehr (W.), *Phys. Rev.*, 1933, **44**, 866.
[23] Lukirsky et Prilezaev, *Z. Physik*, 1928, **49**, 236. Kluge, *Ann. Physique*, 1927, **82**, 432. Bennewitz, *Ann. Physique*, 1927, **83**, 913. Herold, *Ann. Physique*, 1928, **85**, 587.
[24] Dickey (J.), *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 612.
[25] Fan (H. Y.), *Phys. Rev.*, 1945, **86**, 43.
[26] Butcher (P. N.), *Proc. Phys. Soc.*, 1951, A **64**, 765.
[27] Seitz (F.), Mod. Theory of Solids, 1940.
[28] Pines Bohm, *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 625 ; 1952, **85**, 338 ; 1953, **92**, 609, 626.
[29] Wolf (P. A.), *Phys. Rev.*, 1954, **96**, 56.
[30] Fermi, *Nuclear Physics*, 1950.
[31] Pines, *Nuovo Cim.*, 1958, **7** suppl. 2, 329.
[32] Mott (N. F.) et Jones (H.), The Theory and Properties of Metals and Alloys, 1936. Mott (N. F.), *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 1936, **32**, 281.
[33] Hachenberg Brauer, *Adv. in Electr.*, 1959, **11**, 413.
[34] Hinteregger, *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 538.
[35] Baker, *J. Opt. Soc. Amer.*, 1938, **28**, 55.
[36] Walker, Wainfan et Weissler, *J. Appl. Physics*, 1953, **24**, 1318 ; 1955, **26**, 1366.
[37] Meessen (A.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 437. Lontie et Meessen, *Ann. Soc. Scient.*, Bruxelles, 1959, **73**, 390.

LETTRES A LA RÉDACTION

CONFIGURATIONS DE SPIN ET THÉORIE DES GROUPES

Par E. F. BERTAUT,
Laboratoire d'Électrostatique et de Physique du Métal, Institut Fourier, Grenoble.

Notations. — Les configurations de spins possibles dans une structure cristallographique donnée sont les solutions d'un problème matriciel [1]

$$\zeta(\boldsymbol{k})\, \boldsymbol{T}(\boldsymbol{k}) = (\lambda)\, \boldsymbol{T}(\boldsymbol{k}) \tag{1}$$

où les éléments de la matrice (ζ) sont

$$\zeta_{ij} = \sum_{R_j} C_{ij} \exp\,(2\pi i \boldsymbol{k}.(\boldsymbol{R}_i - \boldsymbol{R}_j)) \tag{2}$$

ici

$$C_{ij} = S_i\, J_{ij}\, S_j. \tag{3}$$

$\boldsymbol{S}_i$ est le spin en $\boldsymbol{R}_i . J_{ij}$ est l'intégrale d'échange ordinaire, (λ) est une matrice diagonale dont les termes λ_i représentent à un facteur — 2 près, la contribution à l'énergie d'échange H du spin $\boldsymbol{S}_i$

$$H = -2 \sum \lambda_i. \tag{4}$$

Les λ_i d'atomes équivalents sont égaux. $\boldsymbol{T}_j(\boldsymbol{k})$ est la transformée de Fourier de spins unitaires $\boldsymbol{\sigma}_j (\boldsymbol{\sigma}_j = S_j / S_j)$

$$\boldsymbol{\sigma}_j(\boldsymbol{R}_i) = \sum_k \boldsymbol{T}_j(\boldsymbol{k}) \exp 2\pi \boldsymbol{k}_i . \boldsymbol{R}_i. \tag{5}$$

Cas $\boldsymbol{k} = 0$. — Considérons le cas où maille chimique et magnétique coïncident. On peut alors poser $\boldsymbol{k} = 0$. $\boldsymbol{\sigma}_j$ et $\boldsymbol{T}_j(0)$ s'identifient alors (5). *Les vecteurs propres* $T(0)$ de $\zeta(0)$ (1) *sont les combinaisons linéaires de spins décrivant la configuration de spins.* Envisageons le cas particulier de n atomes équivalents porteurs de spins. Le coefficient C_{ij} dans (1) (cf. (2)) connecte un spin σ_i au spin σ_j.

Or ces spins sont reliés par une opération de symétrie C telle que $\boldsymbol{\sigma}_j = C\boldsymbol{\sigma}_i$. Dans le système matriciel (1) le coefficient de C_{ij} est précisément la matrice représentative de l'apérateur C appliqué aux n spins équivalents. Pour fixer les idées nous envisageons le cas de structures du type corindon [2] telles que α-Fe_2O_3, Cr_2O_3 où les atomes de base des sous-réseaux, numérotés 1, 2, 3, 4 sont respectivement en (00z), $\left(00\,\frac{1}{2} + z\right)$, $(00\bar{z})$ et $\left(00\,\frac{1}{2} - z\right)$. La matrice représentative $\zeta(0)$ a alors la forme

$$\zeta(0) = \begin{vmatrix} A & B & C & D \\ B & A & D & C \\ C & D & A & B \\ D & C & B & A \end{vmatrix} \tag{6}$$

où les A, B, C, D, sont des fonctions linéaires dans les intégrales d'échange. Les coefficients de A, B, C, D sont des matrices que nous noterons par les mêmes lettres. Par exemple :

$$(C) = \begin{vmatrix} 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{vmatrix} \tag{7}$$

est la matrice qui réalise les substitutions $1 \to 3$; $2 \to 4$; $3 \to 1$; $4 \to 2$.

Elle représente l'opération d'un axe binaire, passant par l'origine.

De même, la matrice (D) correspond à l'opération « centre d'inversion » (situé en $\pm \left(00\,\frac{1}{4}\right)$ dans la description des Struktur-Berichte [3]). On vérifie que $(B) = (C)\,(D)$.

Les vecteurs propres de la matrice $\zeta(0)$ apparaissent ainsi comme les combinaisons linéaires de spins, invariantes dans les opérations de symétrie du groupe cristallographique. Dans l'exemple (7) les vecteurs propres sont $\boldsymbol{T_I} = (1, 1, 1, 1)$, $\boldsymbol{T_{II}} = (1, -1, -1, 1)$, $\boldsymbol{T_{III}} = (1, +1, -1, -1)$ et $\boldsymbol{T_{IV}} = (1, -1, +1, -1)$. Toutes les racines sont distinctes et chacun des vecteurs est invariant dans les opérations de symétrie. Il n'en est pas toujours ainsi. Lorsqu'une racine est q fois dégénérée, les q vecteurs propres correspondants forment un sous espace invariant de dimension q. Les opérations du groupe transforment les vecteurs propres en eux et entre eux.

Comme exemple envisageons les sites B octaédriques dans les spinelles cubiques et situés en

$$\left(\frac{5}{8}\frac{5}{8}\frac{5}{8};\ \frac{5}{8}\frac{3}{8}\frac{3}{8};\ \frac{3}{8}\frac{5}{8}\frac{3}{8};\ \frac{3}{8}\frac{3}{8}\frac{5}{8}\right).$$

La matrice $\zeta(0)$ a la forme (6) avec $A = 0$ et $B = C = D$. Les mêmes vecteurs propres $\boldsymbol{T_I}$ à $\boldsymbol{T_{IV}}$ diagonalisent la matrice. Mais il n'y a qu'une racine non dégénérée correspondant au mode $\boldsymbol{T_I}$ et une racine triplement dégénérée. Effectivement, l'opération de l'axe ternaire, passant par $\left(\frac{5}{8}\frac{5}{8}\frac{5}{8}\right)$ change $\boldsymbol{T_{II}}$ en $\boldsymbol{T_{III}}$, $\boldsymbol{T_{III}}$ en $\boldsymbol{T_{IV}}$.

Dans le langage familier en théorie quantique on peut énoncer la proposition suivante :

Si l'opérateur matriciel $\zeta(0)$, ayant pour vecteur propre $\boldsymbol{T}(0)$ et pour valeur propre λ, reste invariant dans une opération de symétrie C $(C^{-1}\,\zeta(0)\,C = \zeta(0))$, alors $C\boldsymbol{T}(0)$ est aussi une solution de valeur propre λ.

Ce qui fait l'intérêt de la théorie des groupes, c'est qu'elle permet de trouver *a priori*, sans considérer (1) et compte tenu uniquement de la nature axiale des vecteurs spins « la base des représentations irréductibles », c'est-à-dire les combinaisons de spins qui sont invariantes dans toutes les opérations de symétrie (racines distinctes) ainsi que celles qui se transforment

dans un sous-espace de dimension q (racines q fois dégénérées). Remarquons que pour $\boldsymbol{k} = 0$ la combinaison (1, 1, ..., 1), correspondant à la représentation identité ou, en langage de physicien, au mode ferromagnétique, est toujours un vecteur propre invariant.

Le calcul des valeurs propres de $\zeta(0)$, lorsque les vecteurs propres sont connus, est évidemment immédiat. Naturellement on peut aussi déterminer les vecteurs et valeurs propres de $\zeta(0)$ et de $\zeta(\boldsymbol{k})$ sans avoir explicitement recours à la théorie des groupes.

Couplage de Systèmes. — Soit un système $\{A\}$ de n_A spins couplé avec un système $\{B\}$ de n_B spins par des intégrales d'échange. On peut alors déterminer *séparément* les modes de $\{A\}$ et de $\{B\}$. Les $n_A + n_B$ vecteurs propres constituent un système complet et la solution du système couplé $\{AB\}$ va être une combinaison linéaire de ces vecteurs. La matrice $\zeta(\boldsymbol{k})$ du système $\{AB\}$ aura la forme (8) et la « bonne » combinaison de vecteurs propres est celle qui diagonalise la matrice de perturbation (p) (9).

$$\zeta(\boldsymbol{k}) = \left|\begin{array}{c|c} \zeta_A & \zeta_{AB} \\ \hline \zeta_{BA} & \zeta_B \end{array}\right| \tag{8}$$

$$(p) = \left|\begin{array}{c|c} 0 & \zeta_{AB} \\ \hline \zeta_{BA} & 0 \end{array}\right|. \tag{9}$$

A titre d'exemple $\{A\}$ représente les sites tétraédriques $\left(000\,;\frac{1}{4}\frac{1}{4}\frac{1}{4}\right)$ dans les spinelles. $\{B\}$ représente les sites octaédriques. Pour $\boldsymbol{k} = 0$, les vecteurs propres du système $\{A\}$ sont $\boldsymbol{T}_{AI} = (1,1)$; $\boldsymbol{T}_{AII} = (1, -1)$. Ceux du système $\{B\}$ sont déjà connus. La matrice d'interaction ζ_{AB} de dimension 2×4 a tous ses termes égaux (proportionnels à l'intégrale d'échange J_{AB}). Les 6 vecteurs $\boldsymbol{T}_{\{AB\}}$ qui diagonalisent $\zeta(\boldsymbol{k})$ (8) complètement sont

$$\boldsymbol{T}_I(1, 1, 1, 1, 1, 1) = \boldsymbol{T}_{AI} + \boldsymbol{T}_{BI}\,;$$

$$\boldsymbol{T}_{II} = (-1, -1, 1, 1, 1, 1) = -\boldsymbol{T}_{AI} + \boldsymbol{T}_{BI}\,;$$

$$\boldsymbol{T}_{III} = \boldsymbol{T}_{AII}\,; \quad \boldsymbol{T}_{IV} = \boldsymbol{T}_{BII}\,; \quad \boldsymbol{T}_V = \boldsymbol{T}_{BIII}$$

et $$\boldsymbol{T}_{VI} = \boldsymbol{T}_{BIV}.$$

Le mode $\boldsymbol{T}_{II}$ est le mode ferrimagnétique classique de Néel [4]. Le fait que pour $\boldsymbol{k} = 0$ dans tout système, $\{A\}$ ou $\{B\}$ le mode ferromagnétique est un vecteur propre, confère évidemment au couplage ferrimagnétique une position privilégiée.

L'auteur a appliqué la méthode décrite aux grenats ferrimagnétiques et aussi aux spinelles dans le cas $\boldsymbol{k} \neq 0$.

Interactions non isotropes. — En plus des intégrales d'échange, on peut introduire des interactions non isotropes telles que l'anisotropie cristalline (couplage dipolaire et pseudo-dipolaire) et le couplage antisymétrique de Dyzaloshinsky [5]-Moriya [6] sans changer le formalisme (1) [7]. Pour $\boldsymbol{k} = 0$, leur action ne crée par de modes nouveaux, mais associe les modes déjà connus entre eux. Par exemple, le couplage D-M [5], [6] associe les modes $\boldsymbol{T}_I$ et $\boldsymbol{T}_{II}$ dans Fe_2O_3 et aussi $\boldsymbol{T}_{III}$ et $\boldsymbol{T}_{IV}$ (dans Cr_2O_3) (mais jamais $\boldsymbol{T}_I$ et $\boldsymbol{T}_{III}$ par exemple). Il suffira en général de diagonaliser la matrice $\zeta(\boldsymbol{k})$ par unecombinaison linéaire convenable des vecteurs propres, trouvés dans le cas isotrope.

Comparaison avec d'autres théories. — Dzyaloshinsky [5], Turov [8] cherchent d'abord, par la théorie des groupes, la base de représentations irréductibles à l'aide de laquelle ils bâtissent un hamiltonien phénoménologique invariant dans les opérations de groupe cristallographique. Leur méthode est macroscopique. Notre méthode est microscopique puisqu'elle descend aux interactions élémentaires. Elles est à notre avis plus puissante puisqu'elle fournit non seulement les mêmes renseignements, mais en outre permet de différencier les divers modes par des conditions de stabilité et de déterminer les intervalles de variation possible des intégrales d'échange [2].

RÉFÉRENCES

[1] Bertaut (F.), *C. R. Acad. Sc.*, 1961, **252**, 76.
[2] Bertaut (F.), *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **252**, 252.
[3] Strukturber (I.), p. 240.
[4] Néel (L.), *Ann. Physique*, 1948, **3**, 137.
[5] Dzyaloshinsky (I.), *J. Phys. Chem. Sol.*, 1958, **4**, 241.
[6] Moriya (T.), *Phys. Rev.*, 1960, **120**, 91.
[7] Bertaut (F.), *C. R. Acad. Sc.*, avril 1961, **252**.
[8] Turov (E. A.) et Najs (B. E.), *J. Met. et Metallurgie*, U. R. S. S., 1960, IX, 10.

CINÉMATIQUE COMPARÉE DE LA DIFFUSION ÉLASTIQUE DES MÉSONS μ ET DES ÉLECTRONS

Par M. Paul Kessler,
Laboratoire de Physique Atomique du Collège de France.

Depuis quelques années, de nombreuses expériences ont été réalisées (notamment par Hofstadter et ses collaborateurs) sur la diffusion élastique des électrons dans la région des centaines de MeV. Actuellement, des expériences analogues sur la diffusion des mésons μ sont en cours ou en préparation dans divers laboratoires. L'idée a été envisagée de faire des expériences parallèles sur les électrons et les mésons μ, dans lesquelles interviendrait le même transfert d'impulsion, donc le même facteur de structure pour une cible donnée. Étant donné la différence de masse entre le méson μ et l'électron, les conditions cinématiques doivent être légèrement différentes. Plus précisément : si l'on considère la diffusion du méson μ pour une impulsion initiale et un angle de diffusion donnés, il faut choisir dans l'expérience parallèle sur l'électron soit une impulsion initiale légèrement différente, soit un angle de diffusion légèrement différent. Nous allons calculer ces différences.

1. Diffusion élastique de mésons mu faiblement relativistes (*fig.* 1). — Nous devons tenir compte de la différence entre l'énergie et l'impulsion de la particule

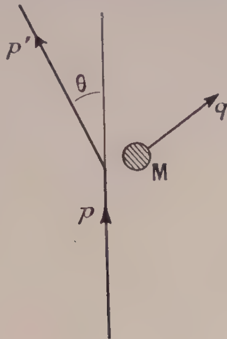


Fig. 1.

(alors que pour l'électron ces quantités sont pratiquement identiques). Nous avons :

$$E = \sqrt{p^2 + m^2} \simeq p + (m^2/2p) ;$$

$$E' = \sqrt{p'^2 + m^2} \simeq p' + (m^2/2p')$$

où (E, p) et (E', p') sont respectivement les énergies-impulsions initiale et finale du méson μ, m sa masse. (On prend $c = 1$, et on néglige systématiquement les termes en m^4.)

Les équations de conservation sont (en appelant M la masse du noyau-cible, et q le transfert d'impulsion)

$$\boldsymbol{p} - \boldsymbol{p}' = \boldsymbol{q} \qquad \text{(a)}$$

$$(p - p')\left(1 - \frac{m^2}{2pp'}\right) + M = \sqrt{q^2 + M^2}, \qquad \text{(b)}$$

soit encore, en élevant chaque membre des deux équations au carré, et en posant $\alpha = 1 - \cos\theta$ (θ étant l'angle de diffusion) :

$$(p - p')^2 + 2\alpha pp' = q^2 \qquad \text{(a')}$$

$$(p - p')^2 - 2M(p - p') + M^2 - \frac{m^2}{pp'}(p - p')(p - p' + M) = q^2 + M^2. \qquad \text{(b')}$$

En soustrayant ces deux équations membre à membre, on obtient :

$$2\alpha pp' - 2M(p - p') + \frac{m^2}{pp'}(p - p')(p - p' + M) = 0,$$

soit encore :

$$p' - \frac{Mp}{M + \alpha p} = - \frac{m^2(p - p')(M + p - p')}{pp'(M + \alpha p)}.$$

Posons

$$p'_0 = Mp/(M + \alpha p) \quad \text{et} \quad p' = p'_0 + \Delta p' ;$$

la quantité $\Delta p'$ (correction sur p' due à la masse de la particule) est donnée dans notre approximation par le second membre de l'équation en y remplaçant simplement p' par p_0. On obtient ainsi :

$$\Delta p' = -\frac{\alpha m^2}{2M} \frac{M^2 + \alpha pM + \alpha p^2}{(M + \alpha p)^2}.$$

L'équation (a') établie plus haut nous donne ensuite q^2. Si nous mettons cette quantité sous la forme

$$q^2 = q_0^2 + \Delta q^2$$

(Δq^2 étant la correction sur q^2 due à la masse de la particule), nous obtenons :

$$q_0^2 = 2\alpha p^2 \frac{M^2 + \alpha pM + (1/2)\alpha p^2}{(M + \alpha p)^2}$$

$$\Delta q^2 = -\alpha^2 m^2 \frac{p}{M} \frac{(M^2 + \alpha pM + \alpha p^2)[M - (1 - \alpha)p]}{(M + \alpha p)^3}.$$

2. Comparaison avec les électrons. — Pour obtenir la même valeur de q^2 que ci-dessus, nous avons à considérer les deux possibilités suivantes. (Nous affecterons d'un indice e toutes les données relatives à l'électron.)

a) L'impulsion initiale de l'électron est légèrement différente de celle du méson μ :

$$p_e = p + \delta p, \qquad \alpha_e = \alpha.$$

et on a

$$q_e^2 = 2\alpha(p + \delta p)^2 \frac{M^2 + \alpha(p + \delta p)M + (1/2)\alpha(p + \delta p)^2}{[M + \alpha(p + \delta p)]^2}.$$

On peut mettre q_e^2 sous la forme

$$q_e^2 = q_0^2 + \delta q^2,$$

où δq^2 est la variation de q^2 due à δp. On obtient (en ne gardant que les termes du premier ordre en δp) :

$$\delta q^2 = 4\alpha p\,\delta p \frac{M^3 + \frac{3}{2}\alpha pM^2 + \left(\alpha + \frac{\alpha^2}{2}\right)p^2 M + \frac{1}{2}\alpha^2 p^3}{(M + \alpha p)^3}.$$

L'égalité $q_e^2 = q^2$ entraîne : $\delta q^2 = \Delta q^2$, d'où :

$$\delta p = -\frac{\alpha m^2}{4M} \frac{(M^2 + \alpha pM + \alpha p^2)[M - (1 - \alpha)p]}{M^3 + \frac{3}{2}\alpha pM + \left(\alpha + \frac{\alpha^2}{2}\right)p^2 M + \frac{1}{2}\alpha^2 p^3}.$$

b) L'angle de diffusion est légèrement différent :

$$p_e = p, \quad \alpha_e = \alpha + \delta\alpha. \quad \text{On a :}$$

$$q_e^2 = 2(\alpha + \delta\alpha)p^2 \frac{M^2 + (\alpha + \delta\alpha)pM + (1/2)(\alpha + \delta\alpha)p^2}{[M + (\alpha + \delta\alpha)p]^2}.$$

En posant $q_e^2 = q_0^2 + \delta' q^2$, où $\delta' q^2$ est la variation de q^2 due à $\delta\alpha$, on obtient (en négligeant les termes en $(\delta\alpha)^2$) :

$$\delta' q^2 = 2p^2\,\delta\alpha \frac{M(M^2 + \alpha pM + \alpha p^2)}{(M + \alpha p)^3}.$$

On doit avoir : $\delta' q^2 = \Delta q^2$, d'où

$$\delta\alpha = -\frac{\alpha^2 m^2}{2pM} \frac{M - (1 - \alpha)p}{M}.$$

On en déduit pour la variation de l'angle θ (sauf au voisinage immédiat de $\theta = \pi$) la valeur :

$$\delta\theta = -\frac{\sin^3\theta/2}{\cos\theta/2} \frac{m^2}{pM} \frac{M - p\cos\theta}{M} \text{ (radians).}$$

En conclusion, on constate que les différences qu'il faut introduire, soit pour l'impulsion initiale, soit pour l'angle de diffusion, sont en règle générale extrêmement faibles.

Le présent travail a été réalisé sous les auspices du Centre National de la Recherche Scientifique, et a bénéficié également de l'aide du Commissariat à l'Énergie Atomique.

Lettre reçue le 2 mars 1961.

MESURES DES CONSTANTES OPTIQUES DE DÉPOTS ÉVAPORÉS DE FLUORURE DE MAGNÉSIUM DANS L'ULTRAVIOLET DE SCHUMANN

Par Mlle D. Fabre et J. Romand,
Laboratoire des Hautes Pressions, Bellevue.

L'objet de la présente note est d'illustrer par quelques exemples pratiques la méthode de détermination des constantes optiques dans l'ultraviolet lointain, dont nous avons exposé antérieurement les principes. Rappelons que la méthode repose essentiellement sur l'utilisation des phénomènes d'interférence par réflexion, produits par une lame mince d'épaisseur variable [1].

Les résultats présentés sont relatifs à une couche de fluorure de magnésium déposée sur support de verre rectangulaire (100 × 17 mm²) suivant une technique permettant d'obtenir des dépôts d'épaisseur variable selon une loi linéaire [2]. Effectivement l'épaisseur varie linéairement de 0 à environ 2 500 Å sur une longueur de 90 mm.

La figure 1 présente, à titre d'exemple, des enregistrements de l'intensité réfléchie par la lame, sous incidence normale, en fonction de la distance à une extrémité, donc en fonction de l'épaisseur. On a choisi trois longueurs d'onde auxquelles correspondent des indices d'extinction assez différents, comme on peut le voir à l'amortissement variable des courbes. Les extrémités des enregistrements correspondent au pouvoir réflecteur du verre ; on remarque du côté des grandes épaisseurs une perturbation due à la diffusion du fluorure, en cours d'évaporation, au delà du cache limitant le dépôt. L'échelle des ordonnées est différente pour chacune des trois longueurs d'onde, et arbitraire ; les valeurs absolues du pouvoir réflecteur seront prises par rapport à celui du support. L'exploration de la plaque est faite par un faisceau lumineux suffisamment étroit pour ne pas modifier le profil du phénomène.

On appelle, comme dans la note précédente, d l'épaisseur, $(\nu - j\varkappa)$ l'indice complexe de la couche, ρ le pouvoir réflecteur air-couche, ρ' le pouvoir réflecteur couche-support, R_1 les ordonnées de la courbe reliant les maxima de la courbe expérimentale, R_2 celles de la courbe reliant les minima. Le dépouillement des enregistrements consiste à mesurer les valeurs de R_1 et R_2 pour une série de valeurs de d, et à calculer les quantités ρ et y qui leur correspondent ; on a montré que l'on avait :

$$\rho = \frac{R_1 + R_2}{4} + \frac{1}{2}\sqrt{R_1 R_2}$$

et

$$y = \rho'(1 - \rho)^2 e^{-\frac{8\pi\varkappa d}{\lambda}} = \frac{R_1 + R_2}{4} - \frac{1}{2}\sqrt{R_1 R_2}. \quad (*)$$

Sur la figure 2, on a porté les valeurs calculées de Log y en fonction de d. On voit qu'elles s'alignent :

(*) En toute rigueur, le terme $(1 - \rho)$ doit être affecté d'un coefficient μ différent de 1, si l'on tient compte du fait que le coefficient de réflexion de Fresnel air-couche est imaginaire. Le coefficient intervient seulement pour le calcul de ρ' à partir de l'ordonnée à l'origine de la droite Log $y = f(d)$. Le calcul donne :

$$\mu^2 = 1 + \frac{16\,\rho}{(1 - \rho)^2}\,\frac{\varkappa^2}{(\nu^2 - 1 + \varkappa^2)^2 + 4\varkappa^2};$$

μ est d'autant plus voisin de 1 que $\varkappa$ est plus petit. Dans la plupart des cas où la méthode est applicable (dans l'ultraviolet lointain), on peut le négliger. Pour le cas présent ($\lambda = 1\,160$ Å ; $\varkappa = 0{,}14$) on a $\mu = 1{,}005$.

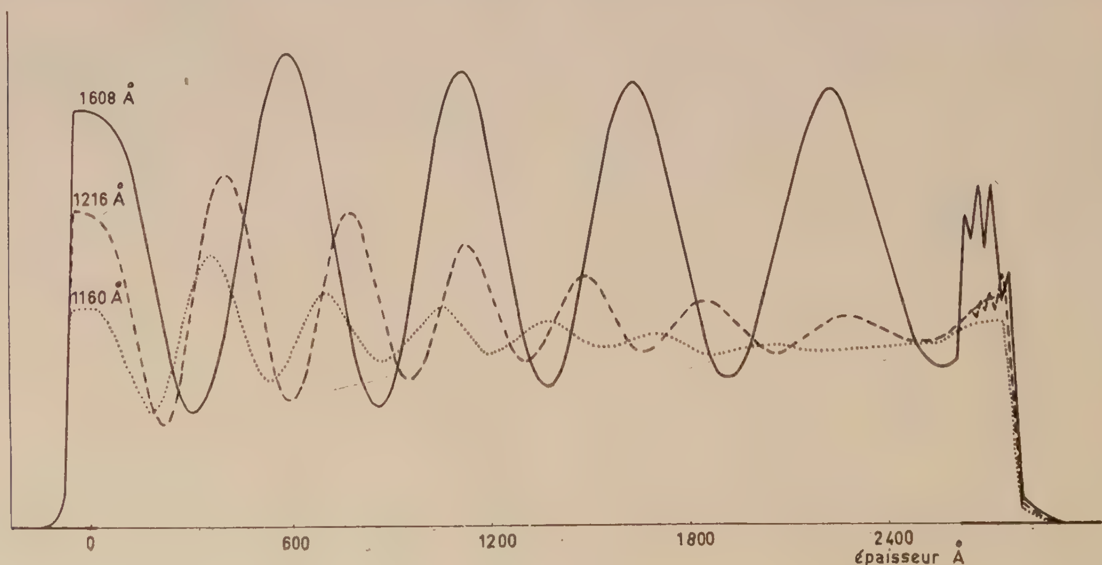


Fig. 1.

$\varkappa$, déduit de la pente $p = - 8\pi\varkappa/\lambda$, est donc sensiblement constant pour les épaisseurs considérées. Dans ces mêmes conditions, on voit que les variations de ρ en fonction de d sont faibles. ρ' que l'on déduit de ρ et de l'ordonnée à l'origine de la droite Log $y = f(d)$, a été calculé pour la valeur moyenne de ρ.

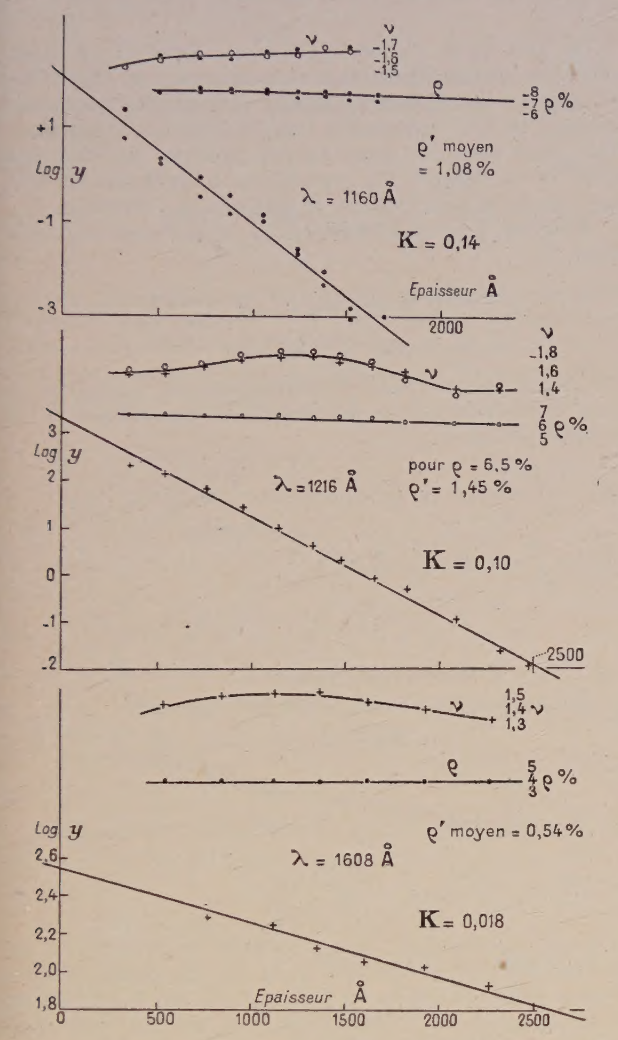


Fig. 2.

Le calcul des indices de réfraction ν se fait de façon un peu différente de celle préconisée dans la note précédente [1] : au lieu de considérer les points de la courbe pour lesquels les ondes lumineuses interférentes sont en quadrature, mais qui ne sont pas immédiatement repérables sur les enregistrements, on utilise les extrêma de la courbe expérimentale ; on admet que, d'un extrêmum au suivant de même nature, la variation d'épaisseur optique est égale à $\lambda/2$. Ceci n'est pas exact, mais on montre que, dans le cas présent, on introduit ainsi une erreur systématique inférieure à 2 ‰, alternativement positive et négative suivant la nature des extrêma, et absolument négligeable devant le gain de précision pratique qu'apporte l'utilisation des extrêma en raison de leur facilité de pointage.

La précision sur $\varkappa$, qui est celle de la mesure de la pente de la courbe Log $y = f(d)$, est de l'ordre de 7 %. La précision sur ν se ramène à celle sur la mesure de la différence d'épaisseur entre deux extrêma de même nature, Δd ; or on a $\Delta d = g\,\Delta l$, g gradient d'épaisseur du dépot pour le Δl considéré ; Δl distance entre les deux extrêma, évaluée à partir de leur pointage sur les enregistrements. $\Delta g/g$ de l'ordre de 2 % pour les faibles épaisseurs, est inférieure à 0,5 % au-dessus de 900 Å. La précision sur la mesure de Δl peut n'être pas meilleure que 2 ou 3 % dans le cas des courtes longueurs d'onde pour lesquelles les extrêma sont plus resserrés, et d'intensité souvent plus faible. L'erreur relative sur la valeur de ν peut donc varier de 1 à 5 % ; elle permet néanmoins, dans cet exemple, de mettre en évidence une variation de l'indice avec l'épaisseur du dépôt, que la reproductibilité des mesures autorise à considérer comme réelle.

La comparaison des valeurs obtenues expérimentalement pour ρ par cette méthode, à celles calculées suivant la formule classique à partir des valeurs expérimentales de ν et $\varkappa$ montre que, si l'on obtient le même ordre de grandeur, la variation de ρ avec l'épaisseur de la couche ne suit cependant pas celle de ν. Ceci peut s'expliquer par la vraisemblable inhomogénéité du dépôt en profondeur [3], [4]. En effet, les valeurs expérimentales de ν correspondent à un indice moyen du dépôt pour une épaisseur donnée, $\nu = \frac{1}{d}\int_0^d \nu_x \, dx$, x étant la profondeur ; tandis que l'indice de réfraction à considérer pour calculer ρ est l'indice en surface. A cet égard, les éventuelles variations de $\varkappa$ ont un rôle négligeable devant celui de ν.

On peut remarquer la très faible valeur du pouvoir réflecteur couche-support, dont il n'y a pas lieu de s'étonner, étant donné les natures voisines des deux matériaux. L'évaporation du fluorure sur un support métallisé conduit à des ρ' beaucoup plus importants et renforce les contrastes dans les courbes expérimentales. Cependant, on retrouve des valeurs comparables de ν et $\varkappa$ quelque soit le support ; en particulier, les valeurs obtenues pour l'indice d'extinction $\varkappa$, sont toujours anormalement grandes par rapport à celles, connues, des fluorures à l'état massif cristallisé ; ceci avait déjà été observé, lors de la mesure de $\varkappa$ par une méthode classique [5].

Lettre reçue le 7 mars 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Fabre (D.), Romand (J.) et Vodar (B.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 263.
[2] Fabre (D.) et Damany (H.), A paraître dans *J. Physique Rad.* (Physique Appliquée).
[3] Bousquet, Thèse. *Ann. Physique*, 1957, **2**.
[4] Hall (J. F.), *J. O. S. A.*, 1957, **47**, 662.
[5] Fabre (D.) et Romand (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1960, **250**, 1226.

SUR UNE GÉNÉRALISATION DU PROBLÈME DE LA DÉTERMINATION DES MATRICES UNITAIRES

Par Alexandre POZWOLSKI,
Recherches technique et industrielle,
111, rue La Béotie, Paris (8e).

Une matrice $||S||$ est dite unitaire quand son inverse $||S||^{-1}$ coïncide avec sa transposée $||S||'$. Dans ce cas,

$$||S||'\,||S|| = ||I||, \tag{1}$$

$||I||$ étant la matrice unité. On peut considérer que l'équation (1) est un cas particulier de l'équation :

$$||X||'\,||X|| = ||A|| \tag{2}$$

où $||A||$ est une matrice symétrique quelconque non dégénérée.

On se propose d'indiquer une méthode de détermination de $||X||$ quand $||A||$ est donnée. Pour cela on pose :

$$||g|| = ||A||^{-1} = \begin{Vmatrix} g_{11} & g_{12} & \cdots & g_{1n} \\ g_{21} & g_{22} & \cdots & g_{2n} \\ \cdot & & & \\ \cdot & & & \\ \cdot & & & \\ g_{n1} & g_{n2} & \cdots & g_{nn} \end{Vmatrix}$$

et on considère un espace vectoriel de métrique g_{ij} rapporté à un repère $[\boldsymbol{e}_1, \boldsymbol{e}_2, \ldots \boldsymbol{e}_n]$ tel que $\boldsymbol{e}_i . \boldsymbol{e}_j = g_{ij}$.

Soit maintenant $[\boldsymbol{E}_1, \boldsymbol{E}_2, \ldots \boldsymbol{E}_n]$ un repère orthonormé de cet espace. Ses vecteurs peuvent être considérés comme une combinaison linéaire des vecteurs du repère précédent :

$$\boldsymbol{E}_i = \sum_{k=1}^{n} \alpha_{ik}\, \boldsymbol{e}_k \quad i = 1, 2, \ldots n$$

les coefficients α_{ik} étant connus et obtenus par la méthode d'orthogonalisation de Schmidt.

On a : $X_{ij} = \alpha_{ij}$ ce qui détermine la matrice $||X||$ cherchée. En effet :

$$\boldsymbol{E}_i = \sum_k \alpha_{ik}\, \boldsymbol{e}_k$$

$$\boldsymbol{E}_j = \sum_l \alpha_{jl}\, \boldsymbol{e}_l$$

$$\boldsymbol{E}_i . \boldsymbol{E}_j = \sum_k \sum_l \alpha_{ik}\, \alpha_{jl}\, g_{kl} = \delta_{ij}.$$

δ_{ij} étant le symbole de Kronecker.

Or la dernière égalité est équivalente à :

$$||\alpha||\,||g||\,||\alpha||' = ||I||$$

c'est-à-dire à

$$||\alpha||'\,||\alpha|| = ||g||^{-1} = ||A||.$$

Il est à noter que, une fois la matrice $||X||$ trouvée, on en déduit une infinité $||Y||$ jouissant de la même propriété par la transformation :

$$||Y|| = ||S||\,||X||$$

$||S||$ désignant une matrice unitaire arbitraire.

Lettre reçue le 8 mars 1961.

CORRECTIONS A L'INTERACTION COULOMBIENNE EN ÉLECTRODYNAMIQUE NON LOCALE

Par E. ARNOUS,
Institut Henri-Poincaré, Paris.

On sait qu'en électrodynamique locale, il est facile d'écrire la transformation canonique $\exp i\Sigma(t)$, qui élimine les ondes longitudinales et scalaires du rayonnement et fait apparaître l'interaction coulombienne. On peut étendre cette transformation au cas non local et en déduire les corrections à l'interaction coulombienne pour le proton, le méson μ et l'électron.

En effet, pour déterminer $\Sigma(t)$, nous avons la condition (*)

$$\chi^+(X', t) \equiv e^{i\Sigma(t)}\, \partial'_\mu\, A^+_\mu(X')\, e^{-i\Sigma(t)} \tag{1}$$

$$d_4\, \chi^+ \equiv \partial_4\, \chi^+ - [\chi^+, H] = 0,$$

où H est l'hamiltonien d'interaction. On en déduit Σ aux différents ordres du calcul de perturbation. On trouve par exemple

$$\Sigma_1 = \int^t d^4x\, Q^\mu\, \partial_\mu\, \partial_4^{-1}\, A_4 = -i \int d^3x\, Q^4\, \partial_4^{-1}\, A_4$$

$$\Sigma_2 = \int^t d^4x\, d^3x' \frac{1}{2} [Q_4, Q'_\mu] \left\{ \partial_4^{-1}\, A_4, A'_\mu - \frac{1}{2}\, \partial'_\mu\, \partial_4'^{-1}\, A_4 \right\}, \tag{2}$$

où Q_μ est le courant non local.

L'hamiltonien d'interaction devient alors

$$H'_1 + H'_2 + \ldots$$

avec

$$H'_1 = H + \dot{\Sigma}_1 = -\int d^3x\, Q^\mu\, (A_\mu - \partial_\mu\, \partial_4^{-1}\, A_4),$$

$$H'_2 = \frac{1}{8\pi} \int d^3x\, d^3y\, \frac{Q_0(X)\, Q_0(Y)}{|X - Y|}$$

H_1 est l'interaction avec le champ transversal, à un terme près proportionnel à $\partial_\mu A_\mu$ qui donne zéro à cause de la condition de Lorentz. H_c est l'interaction coulombienne (non locale). Si l'on calcule cette dernière, on trouve dans le système du centre de masse

$$H_c = \frac{e^2}{8\pi|X|}\, F(|X|\,;\, \lambda,\, m),$$

où

$$F(|X|\,;\, \lambda, m) = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty \mathrm{d}K \frac{\sin KX}{K}\, \rho^2 \left(\frac{K^4}{4} + m^2 K^2 \right),$$

où ρ est le facteur de forme, m la masse de la particule et λ le paramètre de coupure. Si $\rho \equiv 1$, $F \equiv 1$. Si

$$\rho = \frac{\lambda^4}{\lambda^4 + (K^4/4) + m^2 K^2}$$

(*) La condition de Lorentz donnée dans l'article de W. Heitler, E. Arnous et L. O'Raifeartaigh, *Nuovo Cim.* X, 1960, 787 est incorrecte. χ^+ doit être remplacé par (1) et (2).

et $\lambda = M$, masse du nucléon, on trouve, pour le proton

$$H_c = \frac{e^2}{8\pi|X|}$$

$$\left[1 - e^{-MX\sqrt{2}}\left(1 + \frac{11\, MX\sqrt{2}}{16} + \frac{3M^2X^2}{8} + \frac{M^3X^3\sqrt{2}}{24}\right)\right]$$

Pour le méson μ et l'électron dont les masses sont beaucoup plus petites que le paramètre de coupure

$$H_c = \frac{e^2}{8\pi|X|}$$

$$\left(1 - e^{-MX}\left\{\left(1 + \frac{MX}{4}\right)\cos MX + \frac{MX}{4}\sin MX\right\}\right)$$

Dans tous les cas la courbe coulombienne se trouve « coupée » aux environs de la longueur d'onde Compton du nucléon ainsi que le montre par exemple la courbe relative au méson μ et à l'électron. (On a pris pour unité $Mc^2/2 \times 137 = 1$.)

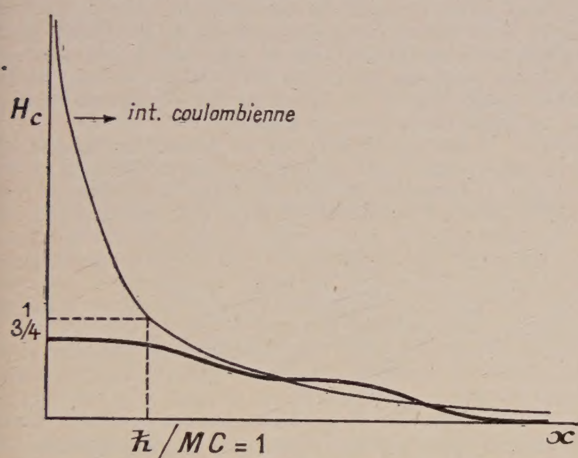


FIG. 1.

Lettre reçue le 2 mai 1961.

STRUCTURE ISOTOPIQUE DE LA RAIE RAMAN DU CHLORE LIQUIDE ET EFFET DE SOLVANT DU CHLORE SUR LE CHLORURE D'ARSENIC

Par Mlle M. L. DELWAULLE et M. Francis WALLART,

Laboratoire de Chimie Minérale de la Faculté des Sciences de Lille.

Nous avons déjà constaté [1] que le spectre Raman du mélange $AsCl_3$ et Cl_2 à la température ordinaire ne présentait pas d'autres fréquences que celles du chlore liquide et du chlorure d'arsenic. Une étude d'ensemble faite au laboratoire sur l'effet de solvant sur les spectres Raman des molécules AX_3 nous a amenés à reprendre l'étude de ce liquide.

La figure 1 donne l'enregistrement au microphotomètre d'un spectre de $AsCl_3$ pur et du spectre d'un mélange de chlorure d'arsenic et de chlore. On s'est arrangé, en faisant toute une gamme de spectres de $AsCl_3$, pour que la raie δ_{12} de $AsCl_3$ soit la même dans les deux spectres.

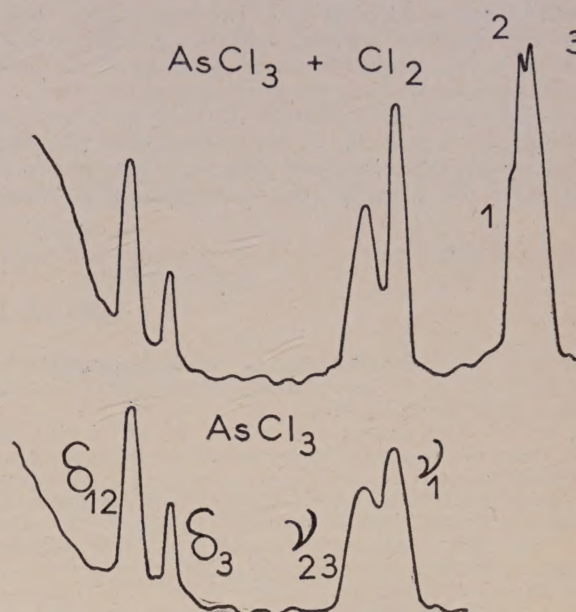


FIG. 1.

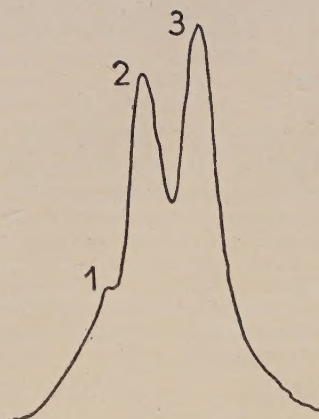


FIG. 2.

On constate que le doublet constitué par les fréquences de déformation de $AsCl_3$ n'a subi aucune altération : les fréquences sont restées les mêmes. La largeur des raies n'a pas varié. Les intensités relatives des deux raies n'ont pas été modifiées. Par contre le doublet constitué par les fréquences de valence de $AsCl_3$ est assez modifié. On constate un léger déplacement des raies. On avait $\nu_{23} = 378$ cm^{-1}, $\nu_1 = 411$ pour le corps pur, on trouve $\nu_{23} = 384$ et $\nu_1 = 412$ dans le mélange. Les raies observées pour le mélange sont net-

tement plus fines que pour le corps pur. On constate également une intensification du doublet de valence quand $AsCl_3$ se trouve en solution. Ces deux modifications sont surtout importantes pour ν_1. Nous avons fait, d'autre part, des mesures par enregistrement photoélectrique direct. Comme le photomultiplicateur n'est pas à son maximum de sensibilité pour la région de 5 460 Å, nous ne donnons qu'à titre indicatif les variations suivantes : le rapport ν_1/δ_3 augmente de 47 % celui de ν_1/ν_{23} augmente de 38 % (largeur de fente 12 cm^{-1}).

La fréquence de vibration du chlore n'est pas modifiée par la présence de $AsCl_3$. On a observé l'effet isotopique du chlore sur cette fréquence. Les trois raies sont fines. La première qui correspond à la molécule $^{37}Cl_2$ est faible comme il fallait s'y attendre. La plus intense est celle qui correspond à la molécule $^{35}Cl_2$. Les trois fréquences sont 533 cm^{-1}, 541 cm^{-1}, 547,5 cm^{-1} à 1 cm^{-1} près. Nous espérons pouvoir bientôt faire les mesures de fréquences avec plus de précision, et mesurer les intensités. La figure 2 est un enregistrement du spectre du chlore pur. La vitesse de déroulement du papier n'est pas la même que pour la figure 1.

Lettre reçue le 9 mai 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Delwaulle (Mlle M. L.) et Delhaye (M.), *Bull. Soc. Chim.*, 1953, 22.

REVUE DES LIVRES

Delcroix (J. L.), **Introduction à la théorie des gaz ionisés.** (1 vol., 11 × 16 cm, 170 p., Monographies Dunod, Paris, 1959, prix : 16 NF).

L'ouvrage *Introduction à la théorie des gaz ionisés* de J. L. Delcroix donne une très bonne vue d'ensemble sur les propriétés des gaz ionisés, domaine particulièrement important pour l'étude et la compréhension du comportement des plasmas et toutes autres questions connexes. Le sujet est traité d'une manière complète, l'approche microscopique aussi bien que l'approche macroscopique se trouvent exposées, toutefois l'auteur préfére la première, pour en déduire les propriétés macroscopiques ; ce livre s'adresse plus particulièrement aux physiciens et ingénieurs qui s'occupent, ou qui s'occuperont, des plasmas et de la physique de la haute atmosphère, aux astrophysiciens et aux étudiants du troisième cycle.

Douze chapitres et trois appendices composent ce petit volume ; les cinq premiers traitent des problèmes fondamentaux généraux : collisions élastiques entre deux particules, sections efficaces de collision élastique, rappels de la théorie cinétique des gaz, notions générales sur les gaz ionisés, théorie des gaz d'électrons libres. Les chapitres VI à IX exposent les propriétés des gaz faiblement ionisés : fonction de distribution des vitesses et grandeurs macroscopiques, théorie des gaz faiblement ionisés, étude microscopique et macroscopique, équations macroscopiques relatives à une composante d'un fluide multiple. Avec les chapitres X à XII, nous abordons la théorie des gaz fortement ionisés, celle des phénomènes collectifs, son approche microscopique et son approche macroscopique. Les trois appendices terminent l'ouvrage par un rappel de quelques questions annexes importantes : tenseur de conductivité d'un gaz d'électrons libres, calcul de la conductivité d'un gaz fortement ionisé selon le modèle de Lorentz, formules usuelles du calcul vectoriel et tensoriel.

Yu Liang-Tsé.

Bishop (A. S.), **Vers la maîtrise de la fusion thermonucléaire.** (1 vol. 15 × 24 cm, 199 p., Dunod, Paris, 1960, prix : 39 NF).

La fusion thermonucléaire est un problème d'actualité, qui préoccupe et mobilise beaucoup de chercheurs dans de nombreux pays, et excite la curiosité de chacun. *Vers la maîtrise de la fusion thermonucléaire* de A. S. Bishop peut satisfaire cette curiosité. C'est en effet une brève description et une mise au point des différentes études, constituant le projet Sherwood, faites par les chercheurs Américains au cours de la dernière décade.

En fait, le but de ce livre est de donner au lecteur un aperçu sur l'origine des programmes de recherches et les problèmes fondamentaux qui ont surgi au cours de ces dernières années ; il s'adresse à tous ceux qui sont peu ou pas familiers avec le sujet et qui veulent avoir une bonne vue d'ensemble sur la fusion thermonucléaire ; le langage mathématique est réduit au strict minimum, et on peut ignorer les quelques formules qui s'y trouvent tout en comprenant parfaitement le texte.

L'ouvrage est composé d'une vingtaine de chapitre. Les deux premiers traitent des problèmes généraux et communs à toutes les méthodes d'approche : principes fondamentaux de la fusion contrôlée, le problème du confinement. Dans les chapitres III à VII sont exposés des développements des diverses tentatives : programmes de striction, du stellarator, du miroir magnétique et divers autres projets. Les deux chapitres suivants nous présentent les propriétés des plasmas : diagnostics et stabilité des plasmas.

La seconde partie comprend les chapitres X à XVII : elle précise les programmes de striction, du stellarator, du miroir magnétique, d'ignition par ions moléculaires, de la géométrie à points de rebroussement, de l'astron et divers autres. Enfin la dernière partie, qui comprend les chapitres XVIII à XX, expose les développements récents et se termine par un résumé et des perspectives d'avenir. Huit appendices et un index alphabétique complètent et terminent l'ouvrage en donnant un aperçu sur des sujets voisins et diverses données sur les modèles expérimentaux : fusion à basse température, réactions thermonucléaires dans les étoiles, modes d'approche non prometteurs, glossaire, références bibliographiques...

Yu Liang-Tsé.

Le Gérant : Maurice Blondin. — Dépôt légal : 2e trim. 1961. — Imp. Taffin-Lefort, à Lille (France).